



Université de Franche-Comté

École Doctorale SPI

Thèse de Doctorat

Spécialité Sciences Pour l'Ingénieur

présentée par

Miguel Angel SUAREZ SANABRIA

Etude et validation de nouveaux
nano-émetteurs destinés à la
microscopie optique en champ proche :
développement de pointes
fonctionnalisées

Soutenue le 17 octobre 2006 devant la commission d'Examen :

Président du Jury :	L. CHUSSEAU	Directeur de Recherche CNRS, Université Montpellier II.
Directeur de Thèse :	D. COURJON	Directeur de recherche CNRS, Université de Franche-Comté.
Rapporteurs :	O. MARTIN	Professeur, École Polytechnique Fédérale de Lausanne.
	R. BACHELOT	Professeur, Université de Technologie de Troyes
Examineurs :	D. CHARRAUT	Chargé de recherche CNRS (thèse d'état), Université de Franche-Comté.
	T. GROSJEAN	Chargé de recherche CNRS, Université de Franche-Comté.

Remerciements

Ce travail a été réalisé au Département d'Optique P.M. Duffieux de l'Institut FEMTO-ST de Besançon, U.M.R. 6174 de l'Université de Franche-Comté. Mes remerciements vont d'abord au CNRS et aux directeurs de ce Département, pour m'avoir accueilli et donné l'opportunité de réaliser ce travail de thèse.

Je remercie Laurent CHUSSEAU d'avoir accepté de participer à mon jury de thèse et d'en avoir assuré la présidence.

Je remercie Olivier MARTIN et Renaud BACHELOT de m'avoir fait l'honneur de rapporter ce travail.

Je remercie Daniel COURJON et Daniel CHARRAUT, directeur et co-directeur de thèse, de m'avoir accueilli dans leur équipe et confié ce travail de recherche.

Je remercie Thierry GROSJEAN pour son investissement et pour sa généreuse collaboration au cours de ce travail.

Je remercie Claudine BAINIER, Dominique HEINIS, Michel SPAJER et Audrey FAHYS qui ont participé de près à la réalisation de ce travail, et à toute l'équipe "Nano-optique et Champ Proche" pour les nombreuses discussions et conseils reçus.

Je remercie Valérie PETRINI et Jean-Yves RAUCH de leur collaboration pour la bonne conduite de la fabrication des micro et nano structures.

Enfin, je remercie tous mes amis, à l'intérieur et à l'extérieur du laboratoire, pour leur soutien.

Mes remerciements vont particulièrement à Fanny et à ma mère pour leur compréhension et leur patience.

Résumé

Un des problèmes majeurs et non encore résolu en microscopie optique champ proche est le choix de l'émetteur ou du capteur optimal. Parmi les techniques développées, l'utilisation de sondes métalliques a conduit aux résolutions les plus élevées. L'inconvénient de ces nano-sondes réalisées à partir de fil métallique, est leur opacité. Une solution hybride combinant un milieu transparent et une couche métallique, par exemple une fibre optique taillée en pointe et métallisée, présente l'intérêt à la fois du guidage de la lumière et de l'existence d'un certain confinement du champ lumineux. Toutefois ces nano-sondes, largement utilisées, présentent de nombreux inconvénients dont le principal est la faible quantité de lumière transmise ou captée.

L'introduction du concept de pointe fonctionnalisée est envisagée dans ce travail afin de remédier à cette carence, en optimisant par segmentation adéquate de la couche métallique, le transfert électromagnétique de ou vers la pointe. Il s'agit ni plus ni moins de la transposition dans le domaine optique du principe de l'antenne segmentée. Ce travail constitue le début d'un vaste sujet de recherche portant sur la fonctionnalisation des sondes destinées à la microscopie champ proche.

Nous avons réalisé dans cette étude le cas d'un anneau métallique nanométrique suivant deux approches, théorique et expérimentale, menées en parallèle. Pour l'approche théorique, nous nous sommes appuyés sur des simulations numériques à partir d'un code de calcul commercial basé sur des différences finies spatio-temporelles FDTD, et sur une approche analytique modale d'un cylindre métallique infini. Pour la partie expérimentale, nous avons mis en place des procédés de fabrication d'anneaux nanométriques assistée par lithographie électronique classique et nous proposons un procédé original qui combine la lithographie électronique et une attaque ionique argon, afin de surmonter les limites de résolution imposées par les performances de nos appareillages (MEB). Toutes ces techniques ont été réalisées au sein de la centrale de technologie MIMENTO de l'Institut FEMTO-ST.

Mots clés : Champ proche optique, Sondes locales destinées à la microscopie en champ proche, Nano-antennes, Nano-anneaux, Modélisation, Modèle de dispersion, FDTD, Analyse modale, Polarisation radiale, Polarisation azimutale, Nanofabrication, Lithographie électronique, Attaque ionique argon, Usinage FIB.

Abstract

One of major problems not yet solved in scanning near-field optical microscopy is the choice of the optimal emitter or sensor. Among the developed techniques, the use of metal probes led to the highest resolutions. The drawback of these nano-probes fabricated with metallic wire, is their opacity. A hybrid solution combining a transparent medium and a metal layer, for example a metallized optical fibre tip, present the double interest for the guiding of the light, and at the same time, for the existence of a specific field confinement. However these widely used nano probes present many disadvantages, the main of wich is the limited quantity of transmitted or collected light.

The introduction of the functionalized tip concept is developed in this work, in order to circumvent this deficiency, optimizing the electromagnetic transfer from or to the apex tip, by a proper segmentation of the metal layer. This is the transposition of the segmented antenna principle in the domain of the optical wavelength. This work constitutes the beginning of a large subject of research relating to the fonctionalization of the probes intended for near-field microscopy.

In this work, we carried out the case of a metallic nanoring according to theoretical and experimental parallel approaches. The theoretical study is based on numeric simulations using a commercial code related to the space-time finite differences FDTD method, and on the analytical modal approach of an infinite metallic cylinder. For the experimental part, we set up nanometric manufacturing processes of rings assisted by conventional electronic lithography. Finally we propose an original process combining electronic lithography and argon ion etching, in order to overcome the limits of resolution imposed by the performances of equipment (SEM mainly). All the fabrications were performed at MIMENTO, the center of technology of FEMTO-ST Institute.

Key-words : Near-field optics, Local probes tips for near-field microscopy, Nano-antennas, Nanorings, Modeling, Dispersion model, FDTD, Modal Analysis, Radial polarization, Azimuthal polarization, Nanofabrication, e-beam lithography, argon-ion etching, FIB etching.

Table des matières

Remerciements	i
Résumé	iii
Abstract	v
Table des matières	vii
Table des figures	ix
Liste des tableaux	xiii
Liste des abréviations	xv
Introduction	1
1 Les sondes en champ proche optique	3
1.1 Introduction	3
1.2 Notion de champ proche optique	3
1.3 Microscope optique en champ proche (<i>SNOM</i>)	4
1.3.1 Contrôle de la distance sonde-échantillon	6
1.4 Fabrication des sondes destinées au champ proche optique	7
1.4.1 Rappels	8
1.4.2 Pointes fabriquées en extrémité de fibre optique	8
1.4.3 Pointes sur micro-levier AFM	14
1.5 Caractéristiques et optimisation des sondes	17
1.5.1 Sondes à ouverture	18
1.5.2 Sondes sans ouverture	20
1.6 Conclusion	21
2 Antennes et champ proche	23
2.1 Introduction	23
2.2 Rappels sur les antennes	24
2.2.1 Champ statique du dipôle électrique et magnétique	24
2.2.2 Rayonnement d'un dipôle oscillant	25
2.3 Antennes dipolaires dans le champ proche	30

2.3.1	Champ proche en micro-ondes	30
2.3.2	Champ proche infrarouge	31
2.3.3	Notion d'antenne dans le domaine du visible	33
2.4	Conclusion	37
3	Etude numérique d'un anneau métallique	39
3.1	Introduction	39
3.2	La méthode de calcul <i>FDTD</i>	40
3.2.1	Conditions initiales de calcul	42
3.2.2	Définition de l'espace de simulation et des paramètres de calcul	50
3.3	Méthode des modes couplés	52
3.3.1	Distribution du champ	54
3.3.2	Intégrales de recouvrement	54
3.4	Résultats et interprétations	55
3.4.1	Etude de l'anneau métallique	56
3.4.2	Cas d'un anneau segmenté	69
4	Fabrication des nano-structures	77
4.1	Introduction	77
4.2	État de l'art de la lithographie	77
4.3	Technique par lithographie électronique	79
4.3.1	Introduction	79
4.3.2	Résines électrosensibles	81
4.3.3	Préparation de l'échantillon	82
4.3.4	Insolation des motifs	82
4.3.5	Développement et lift-off	87
4.3.6	Résultats	90
4.4	Solution alternative : lithographie électronique et processus de redéposition	94
4.4.1	Lithographie colloïdale	94
4.4.2	Lithographie électronique et attaque argon	94
4.5	Usinage par <i>FIB</i>	97
4.6	Conclusion	98
5	Conclusion et perspectives	101
	Bibliographie	104

Table des figures

1.1	Principe du microscope en configuration <i>SNOM</i> où la sonde joue le rôle de nano-émetteur placé dans la zone champ proche de la surface.	5
1.2	Principe du microscope <i>SNOM</i> où la sonde joue le rôle de nano collecteur placé dans la zone champ proche de la surface.	6
1.3	Schéma de fabrication d'une "pointe tétraédrique" [11, 12].	8
1.4	Images <i>MEB</i> de pointes fabriquées par attaque chimique et schéma de principe de fabrication par attaque chimique.	10
1.5	Schéma de principe du chauffage-étirage	11
1.6	Image d'une pointe fabriquée par chauffage-étirage en une étape.	12
1.7	Fabrication d'une pointe polymère d'après la référence [31].	13
1.8	Schéma de fonctionnement des sondes de type <i>AFM</i> . Le faisceau laser et la photodiode permettent de contrôler la déflexion du levier.	14
1.9	Résultats de gravure anisotrope et isotrope du silicium (<i>Si</i> orienté $< 100 >$).	15
1.10	Processus de fabrication des sondes utilisant un substrat de silicium usiné comme préforme.	16
1.11	Processus de fabrication des sondes en utilisant les possibilités de gravure isotrope.	17
1.12	Différents types d'illumination utilisés avec les sondes micro-usinées.	17
2.1	Dipôle électrique et dipôle magnétique en régime statique.	25
2.2	Rayonnement du dipôle oscillant et quelques antennes filaires caractéristiques.	28
2.3	Un exemple de métamatériau	30
2.4	Quelques sondes destinées à l'inspection champ proche dans le domaine des micro-ondes.	32
2.5	Exemples d'antennes et de sondes champ proche dans le domaine de l'infrarouge.	34
2.6	Exemples d'exploitation du phénomène de résonance plasmon de surface.	36
3.1	Maillage de l'espace proposé par Yee [123]. Le champ \mathbf{H} est calculé sur un maillage décalé d'une demi-maille par rapport au maillage utilisé pour le calcul du champ \mathbf{E}	41
3.2	Courbes de dispersion de la constante diélectrique de l'or.	45
3.3	Types de régimes temporels utilisés pour la simulation pour $\lambda = 594$ nm. En continu, la variation temporelle globale, et en pointillé, la fonction d'enveloppe.	46

3.4	Distribution gaussienne d'amplitude du champ électrique pour les polarisations linéaire et circulaire."	47
3.5	Distributions d'amplitude du champ électrique en polarisation radiale. Les flèches donnent la direction de vibration du champ électrique.	48
3.6	Distributions d'amplitude du champ électrique en polarisation azimutale. Les flèches donnent la direction de vibration du champ électrique.	48
3.7	Représentation de la structure et des conditions de calcul définis pour la simulation.	51
3.8	Résultat de la différence entre le calcul du champ E réalisé avec $\Delta z = 5$ nm et $\Delta z = 7$ nm.	52
3.9	Comportement temporel et spectral du champ incident.	57
3.10	Spectre normalisé S pour la polarisation linéaire et circulaire (en a,d et e,f respectivement), du champ électrique (a,c,e) et du champ magnétique (b,d,f). (a,b et e,f) pour la ligne $y = 0$ (direction de polarisation du champ électrique pour la polarisation linéaire), (c,d) pour la ligne $x = 0$	58
3.11	Spectre normalisé S pour la polarisation radiale et azimutale (en a,b et c,d respectivement) du champ électrique (a,c) et du champ magnétique (b,d) pour la ligne $y = 0$	59
3.12	(a) Position des points d'analyse A à E par rapport à la géométrie de l'anneau. Courbes spectrales S pour le champ électrique en (b,d), pour le champ magnétique en (c,e). pour la polarisation linéaire suivant la direction (AC), polarisation circulaire en (d,e).	60
3.13	Courbes spectrales S pour les polarisations radiale en (a,b) et azimutale en (c,d); (a,c) pour le champ électrique et (b,d) pour le champ magnétique.	61
3.14	Variations d'intensité ($F(x, y, z_0, \omega_0)$) du champ électrique (a,c) et du champ magnétique (b,d) pour les polarisations, linéaire (a,b) et circulaire (c,d), $\lambda_0 = 752$ nm. Dans le coin supérieur droit, l'intensité du champ simulé avec l'anneau (G_a) sur le plan d'analyse z_0 . Les 2 cercles noirs représentent les bords de l'anneau, 500 nm de rayon extérieur et 200 nm de rayon intérieur).	63
3.15	Variations d'intensité ($F(x, y, z_0, \omega_0)$) du champ électrique (a,c) et du champ magnétique (b,d) pour les polarisations radiale (a,b) où $\lambda_0 = 541$ nm, et azimutale (c,d) où $\lambda_0 = 514$ nm. Dans le coin supérieur droit, l'intensité du champ simulé avec l'anneau (G_a) sur le plan d'analyse z_0 . Les 2 lignes noires représentent les bords de l'anneau.	64
3.16	Courbes de dispersion pour $n = 0$ et $n = 1$, d'un cylindre infini (2D).	65
3.17	Position des 2 plans d'analyse pour la simulation $FDTD$ en régime permanent.	65
3.18	Poids des modes $n = 0$ et $n = 1$ pour 2 longueurs d'onde différentes (a,c,e,g pour $\lambda = 541.2$ nm et b,d,f,h pour $\lambda = 752.4$ nm).	67
3.19	Représentation des anneaux segmentés radialement ($a-d$) et azimutalement (e). La largeur de coupure est de 50 nm ($a-c,e$) et de 25 nm (d).	70

3.20	Courbes spectrales S au centre de l'anneau dans le plan d'analyse ($z = z_0 = 7nm$). (a,c) pour le champ électrique et (b,d) pour le champ magnétique. (a,b) pour un anneau segmenté radialement en polarisation radiale et azimutale respectivement, (c,d) pour un anneau évidé azimutalement en polarisation radiale et azimutale respectivement.	71
3.21	Variation de l'intensité du champ électrique F pour la polarisation radiale. (a) pour l'anneau complet, ($b-e$) quand l'anneau est segmenté radialement, (f) quand l'anneau est évidé azimutalement.	72
3.22	Variation de l'intensité du champ F pour la polarisation azimutale. (a,b) champ électrique et magnétique pour l'anneau entier respectivement, (c,d) champ électrique et magnétique pour l'anneau évidé azimutalement.	72
3.23	Structures annulaires segmentées sur les bords interne et externe.	73
3.24	Courbes spectrales S au centre de l'anneau dans le plan d'analyse ($z = z_0$), pour un anneau segmenté sur les parois interne et externe. (a) pour le champ électrique en polarisation radiale, (b) pour le champ magnétique en polarisation azimutale.	73
3.25	Variation F du champ électrique en polarisation radiale pour les anneaux segmentés sur les parois internes et externes représentés sur la figure 3.23 respectivement.	74
3.26	Variation F du champ en polarisation azimutale pour les anneaux segmentés sur les parois internes et externes représentés sur la figure 3.23 respectivement. ($a-c$) pour le champ électrique, et ($d-f$) pour le champ magnétique.	74
3.27	Anneau segmenté sur le bord interne.	75
3.28	Courbe spectrales S au centre de l'anneau sur le plan d'analyse ($z = z_0$), pour l'anneau segmenté sur la paroi interne représenté sur la figure 3.27. (a) pour le champ électrique en polarisation radiale, (b) pour le champ magnétique en polarisation azimutale.	75
3.29	Variation F du champ en polarisation radiale (a) et azimutale (b,c) pour l'anneau segmenté sur la paroi interne représenté sur la figure 3.27. (a,b) pour le champ électrique, (c) pour le champ magnétique.	76
4.1	Les procédés de lithographie	78
4.2	Schéma et résultats du processus de lithographie électronique classique. . .	80
4.3	Schéma du processus à quatre couches proposé par Hübner & <i>al.</i> [142] . . .	82
4.4	Caractéristiques de la couche de <i>PMMA</i> déposée par <i>spin coating</i>	83
4.5	Schéma du microscope électronique <i>MEB</i> "Leica S440" de la société <i>Orsay Physics</i>	84
4.6	Effets de l'interaction électron-matière (d'après la Ref. [145]).	86
4.7	Effet de proximité	87
4.8	Caractéristiques des zones programmées pour l'application de la dose de chaque passage par rapport au centre de la couronne circulaire. \bar{R} est le rayon moyen et w est la demi largeur de la couronne insolée.	88
4.9	Deux méthodes de dépôt de couches minces.	90

4.10	Image <i>MEB</i> des anneaux obtenus en réalisant un seul passage en (a) et quatre passages en (b). Dans le coin supérieur gauche le grossissement d'un anneau.	91
4.11	(<i>a,b</i>) superposition des bords calculés à partir des images <i>MEB</i> précédentes (r_i) et des ellipses adaptées (R_i). (<i>c,d</i>) valeurs de r_i et R_i pour chacun des points par échantillonnage angulaire. Pour 1 passage en (a,c) et 4 passages en (b,d).	92
4.12	Fabrication d'anneaux d'or par <i>lithographie colloïdale</i> avec redéposition. . .	94
4.13	Image <i>MEB</i> d'un exemple de fabrication par la technique mise en oeuvre dans ce travail	95
4.14	Schéma du processus proposé	95
4.15	Images <i>MEB</i> d'anneaux obtenus par lithographie électronique et attaque ionique	96
4.16	Principe et exemple d'usinage d'un anneau par <i>FIB</i>	97

Liste des tableaux

- 3.1 Rapport entre les maximums respectifs des champs transversaux et longitudinaux. L'ouverture angulaire dans l'air associée à ce rapport, et calculée d'après la référence [129] est donnée entre parenthèses. 69
- 4.1 Écart σ_i , entre l'anneau réalisé et son approximation par une ellipse (i signifiant interne ou externe). 93

Liste des abréviations

FDTD	Finite-Difference Time-Domain
FIB	Focused ion beam Faisceau d'ions focalisé
GDR	Groupe de recherche
CNRS	Centre National de la Recherche Scientifique
SNOM	Scanning Near-field Optical Microscopy Microscopie à balayage du champ proche optique
PSTM	Photo Scanning Tunneling Microscopy
STOM	Scanning Tunneling Optical Microscopy
STM	Scanning Tunneling Microscopy
AFM	Atomic Force Microscopy Microscope à Force Atomique
MEB	Microscope électronique à balayage
UV	Ultra-Violet
LNIO	Laboratoire de Nanotechnologie et d'Instrumentation Optique
SAM	Self-Assembled Monolayer
MMP	Multiple MultiPole
MFM	Magnetic Force Microscopy Microscopie de Forces Magnétiques
LPS	Localized Plasmon Surface Plasmons localisés de surface
FRET	Fluorescence Resonance Energy Transfer
SRR	Split Ring Resonators
IRM	Imagerie par Résonance Magnétique
PML	Perfectly matched layer
PMMA	polymère Poly MethylMethAcrylate
RIE	Reactive Ion Etching Gravure Ionique Réactive
DRIE	Deep Reactive Ion Etching Gravure Réactive Profonde
IPA	Isopropanol
MIBK	Methyl IsoButyl Keytone

Introduction

Depuis les années 80, le développement des systèmes d'imagerie basés sur la détection des ondes non progressives (ondes évanescentes), a permis de dépasser la barrière de résolution latérale, mise en évidence par Rayleigh pour les systèmes d'imagerie optique classiques reposant sur la détection des ondes progressives. La base de ce nouveau type de microscopie, appelée *la microscopie champ proche*, est la détection du champ proche (ondes évanescentes et ondes propagatrices). Les ondes évanescentes, caractérisées par une décroissance exponentielle de leur intensité en fonction de la distance de propagation, présentent donc une profondeur de pénétration beaucoup plus faible que les ondes progressives. Leur détection nécessite l'emploi d'une sonde capable de les capter au voisinage de la surface de l'objet.

Un des problèmes majeurs et encore non résolus de la microscopie optique champ proche est la conception de nano-émetteurs ou nano-capteurs optimaux du point de vue de la prise en compte séparément du champ électrique et du champ magnétique. Parmi les techniques développées, l'utilisation de sondes métalliques a conduit aux résolutions les plus élevées. L'inconvénient de ces nano-sondes réalisées à base de fil métallique, est leur opacité. Une solution hybride combinant un milieu transparent et une couche métallique, par exemple une fibre optique taillée en pointe et métallisée, présente l'intérêt à la fois du guidage de la lumière et de l'existence d'un certain confinement du champ lumineux. Toutefois ces nano-sondes, largement utilisées, présentent de nombreux inconvénients dont le principal est la faible quantité de lumière transmise ou captée du fait même de la dimension nanométrique des ouvertures.

L'introduction du concept de pointe fonctionnalisée permettrait de pallier cette carence, en optimisant par segmentation adéquate de la couche métallique, le transfert électromagnétique de/ou vers la pointe. Il s'agit ni plus ni moins de la transposition dans le domaine optique visible du principe de l'antenne segmentée connue dans d'autres domaines du rayonnement électromagnétique.

Ce travail est présenté en 4 chapitres. Dans le premier nous présentons un bref état de l'art de la microscopie champ proche, dont la finalité est de montrer qu'au niveau de la fabrication de la sonde, il existe un large savoir-faire. Les progrès technologiques permettent aujourd'hui de créer des sondes de différentes formes et/ou de combiner différents matériaux pour leur réalisation. Pourtant à l'heure de l'acquisition des données, la

compréhension de l'information dépend fortement de la nature de la sonde. Ceci met en évidence la nécessité d'étudier le caractère vectoriel de la sonde.

Ainsi, la sonde peut être développée suivant le concept de nano-antenne ; c'est pourquoi nous présentons dans le deuxième chapitre le principe des deux antennes fondamentales : le *doublet* et l'*antenne en boucle*. Ensuite, nous faisons une revue de travaux traitant de l'introduction du concept d'antenne, et de la fabrication des sondes, pour la microscopie champ proche dans différents domaines spectraux. Finalement, nous montrons comment le concept d'antenne, dans le domaine visible, commence à être exploité à partir du phénomène de résonance plasmon. Cette présentation permet ainsi de souligner le récent intérêt de la transposition du concept d'antenne dans la nano-optique, malgré les réelles contraintes technologiques à surpasser, dues en particulier au rapport des longueurs d'onde et aux propriétés des matériaux.

Ceci explique pourquoi nous nous sommes intéressés plus particulièrement aux propriétés optiques de l'antenne en boucle, ou anneau, dans le domaine optique. Dans ce but, le troisième chapitre aborde cette étude par une analyse numérique et une analyse expérimentale, conduisant dans le quatrième chapitre, à la mise en place des procédés de fabrication des nano-anneaux.

L'analyse numérique est réalisée en appliquant les méthodes des différences finies dans le domaine temporel (**FDTD**) et des modes couplés. Compte tenu de la géométrie de l'anneau, nous avons introduit dans notre étude, des polarisations adaptées (polarisation radiale et azimutale), qui offrent potentiellement plus de capacités dans la détection/émission de la nano-antenne. Les principes et les paramètres nécessaires pour l'application appropriée de ces méthodes, et les résultats obtenus, seront exposés dans le troisième chapitre.

Parallèlement, afin d'entreprendre la réalisation de telles nano-structures, nous proposons une analyse des procédés de nano-fabrication adaptés à leur dimension, à savoir la lithographie e-beam et l'usinage par un faisceau d'ions focalisé (**FIB**). Mais de nombreux essais ont été nécessaires avant d'arriver à la fabrication de structures de dimensions et de qualité acceptables. Finalement, la mise en place d'un procédé original, nous a permis de surpasser la résolution imposée par le microscope électronique disponible dans notre environnement. Dans le quatrième chapitre nous décrivons toutes les possibilités dans le but d'en dégager les conditions optimales d'utilisation.

Chapitre 1

Les sondes en champ proche optique

1.1 Introduction

Après avoir rappelé brièvement la notion de champ proche et son utilisation en microscopie optique, nous nous proposons de décrire dans ce chapitre les différentes méthodes de conception et de fabrication des sondes locales, et leurs développements. Les problèmes liés à la résolution dans les mesures expérimentales, dépendant directement des caractéristiques et de l'utilisation des sondes, sont également abordés sans rentrer dans les détails pour l'analyse des résultats et l'interprétation des images. Pour une étude complète du développement de la microscopie optique en champ proche, nous pouvons faire référence au livre de D. Courjon [1], entièrement consacré au champ proche optique, ainsi qu'à l'ouvrage édité à la suite de la tenue d'une école thématique du GDR du CNRS "Optique du Champ Proche : théorie et applications" [2].

La suite du chapitre est consacrée à la description des sondes les plus couramment utilisées et les techniques proposées pour leur optimisation. Une vue relativement large des récents développements des sondes utilisées en champ proche optique peut être trouvée dans les articles publiés à la suite des conférences de "Near Field Optics" (NFO) [3, 4].

1.2 Notion de champ proche optique

Dans le cas général de l'interaction d'un champ électromagnétique avec un objet, l'information caractéristique qui lui est attachée est totalement contenue dans le champ diffusé. Comme étape préalable à la restitution de l'information propre à l'objet, le positionnement d'un détecteur, par exemple une caméra, une résine photosensible, ou même l'oeil, permet la collecte du champ résultant. Les développements de la théorie de la dif-

fraction du champ électromagnétique ont en charge la compréhension de ces phénomènes et la mise en place des relations entre les champs détectés et l'objet.

Dans le cas du rayonnement lumineux où le champ électromagnétique est associé aux longueurs d'onde visibles, rappelons l'existence possible de deux régimes de propagation du champ électromagnétique.

D'une part, une contribution du champ peut se propager dans l'espace libre, appelé *Champ Radiatif*. Pour une longueur d'onde donnée λ , ce champ correspond à des ondes de vecteurs d'onde k réels dont chacune des composantes reste inférieure à $\omega/c = 2\pi/\lambda$. C'est le domaine des ondes homogènes propagatives qui prend en compte les fréquences spatiales basses, associées aux dimensions spatiales supérieures à la longueur d'onde λ du rayonnement lumineux.

D'autre part, une contribution appelée *Champ Évanescent*, qui correspond à la propagation d'ondes de vecteurs d'onde complexes dont les composantes sont supérieures à $\omega/c = 2\pi/\lambda$. La mise à profit de l'existence de ce mode de propagation impose une contrainte expérimentale par le fait que ces ondes présentent une amplitude qui décroît exponentiellement dans la direction normale à la surface de l'objet. Leur domaine d'existence est alors limité à une distance de l'ordre de $\lambda/2\pi$. C'est le domaine des ondes évanescentes qui prend en compte les fréquences spatiales élevées, associées aux informations spatiales sub-longueur d'onde. Ce qui signifie que l'information associée aux détails fins de l'objet, plus petits que la longueur d'onde du rayonnement, reportée dans le champ évanescent, est confinée au voisinage immédiat de la surface des objets dans la zone dite de *Champ Proche*.

Plus de détails sur le développement des ondes évanescentes peuvent être trouvés dans l'ouvrage de F. de Fornel [5].

1.3 Microscope optique en champ proche (*SNOM*)

Nous avons indiqué comment le champ électromagnétique propagatif, agissant comme un filtre "*passe bas*" de fréquences spatiales, affecte les performances des systèmes d'imagerie classique en particulier en microscopie conventionnelle, dont les limites intrinsèques de résolution sont imposées par le critère de Rayleigh [6].

Par application du principe inverse de propagation de la lumière, si des ondes évanescentes existent au voisinage d'un objet plongé dans un champ propagatif, ces ondes peuvent interagir avec des objets de dimension sub- λ et engendrer des ondes homogènes progressives qui contiennent alors des informations optiques provenant d'éléments spatiaux de taille inférieure à λ . Ce principe est à la base de la microscopie optique en champ proche dès lors que l'on est capable de disposer de capteurs de taille sub- λ , et de garantir

la précision nanométrique de leur positionnement par rapport aux surfaces des objets étudiés. Ainsi, l'utilisation d'une nanosonde, maintenue à une distance nanométrique contrôlée au voisinage d'un objet, permet par balayage d'enregistrer simultanément d'une part, le relief $z(x, y)$ de l'objet à l'échelle nanométrique, et d'autre part, les intensités lumineuses en tout point de la surface d'exploration. Notons que la distance sonde-échantillon peut être contrôlée de plusieurs façons : "à intensité constante", "à hauteur constante" et "à distance constante". Cette dernière technique est largement utilisée, car elle présente l'avantage d'éviter le contact avec la surface.

La sonde peut être utilisée dans deux configurations distinctes. Dans la première, la lumière est injectée dans la sonde; placée dans la région de champ proche, elle éclaire localement la surface de l'objet par les ondes évanescentes issues de son extrémité. La diffraction provoquée par la présence de l'objet va convertir les ondes évanescentes en ondes progressives, qui seront collectées par un système classique de mesure ou par la sonde elle-même, par rétro-diffusion de la lumière. La sonde joue ici le rôle de *nano-émetteur*. Un schéma de cette configuration est présenté sur la figure 1.1.

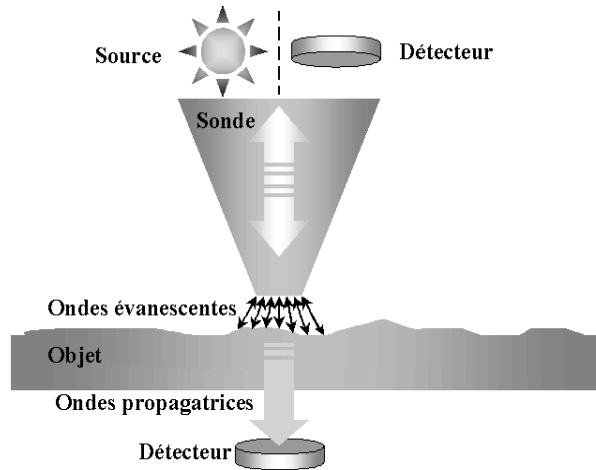


FIG. 1.1 – Principe du microscope en configuration *SNOM* où la sonde joue le rôle de nano-émetteur placé dans la zone champ proche de la surface.

Dans une deuxième configuration, l'objet éclairé par un système conventionnel, génère des ondes évanescentes, et la sonde placée dans la région du champ proche est utilisée pour transformer les ondes évanescentes en ondes progressives transmises par guidage vers un détecteur. La sonde joue alors le rôle de *nano-collecteur*. Un schéma de la configuration est présenté sur la figure 1.2. Une variante de cette technique met en oeuvre une illumination d'un échantillon transparent en réflexion interne totale (configuration *PSTM* ou *STOM* [7]).

En conclusion, ayant rappelé les conditions d'existence des ondes évanescentes et de la perspective de leur utilisation en microscopie optique haute résolution, en champ proche, nous avons abordé le problème des sondes locales et du rôle incontournable qu'elles jouent dans la formation des images. En particulier, compte tenu de la faible profondeur de

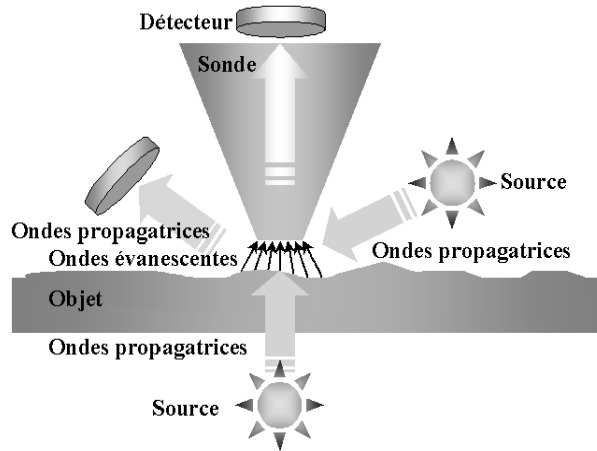


FIG. 1.2 – Principe du microscope *SNOM* où la sonde joue le rôle de nano collecteur placé dans la zone champ proche de la surface.

pénétration des ondes évanescentes, nous avons souligné les nécessités d'un positionnement de la sonde au voisinage immédiat des surfaces, non seulement à cause du caractère exponentiel de leur atténuation mais également pour maintenir une bonne résolution, qui globalement sera d'autant plus grande que la distance sonde-échantillon sera petite [2].

1.3.1 Contrôle de la distance sonde-échantillon

Dans la suite, sans justifier en détail les conditions d'acquisition des mesures expérimentales, nous nous plaçons dans la configuration où la sonde analyse l'échantillon à distance constante. En plus de la nécessité de positionner la sonde au voisinage de la surface de l'objet, très inférieure à la résolution désirée, le maintien de cette distance au cours du balayage de la surface impose des difficultés techniques supplémentaires. En effet, B. Hecht & *al.* [8] ont montré que les fortes variations des champs suivant la hauteur, peuvent introduire des artéfacts topographiques dans l'image de champ proche, et que seule la connaissance préalable (*a priori*) de l'échantillon permet une interprétation fiable de l'image optique obtenue. Ces conditions imposent évidemment une gestion optimale des signaux électriques et grande isolation mécanique des dispositifs.

En microscopie optique en champ proche, suivant l'exemple de la microscopie à effet tunnel *STM*, où le contrôle de la distance sonde-échantillon est régulée à partir de l'interaction électrique sonde-échantillon, le maintien de la distance se fait grâce à l'existence d'une interaction mécanique sonde-surface (forces de friction ou forces normales). La mesure électrique d'un signal associé à cette grandeur, injectée dans une boucle d'asservissement, est comparée à une consigne, et une commande rétroactive du déplacement de l'échantillon, ou de la sonde, permet de maintenir le signal détecté fixe par rapport à la consigne prédéfinie.

Deux configurations sont possibles pour réguler l'interaction mécanique entre la sonde et la surface de l'objet.

- Une première configuration utilise les forces de cisaillement (généralement appelées *shear forces*) qui apparaissent lorsque la sonde oscille latéralement très près de la surface. Dans ce cas, la sonde est fixée sur un dispositif mis en vibration latérale au-dessus de l'échantillon, travaillant à sa fréquence de résonance. On emploie couramment un petit diapason en quartz, et la sonde est collée sur un des bras. Au cours de l'approche de la surface de l'ensemble diapason-sonde, la perturbation des forces de cisaillement génère une diminution de l'amplitude de vibration et donc un changement des conditions de résonance. Un déplacement du dispositif, perpendiculaire à la surface, permet de rétablir l'amplitude de vibration à la valeur de la consigne d'asservissement et assure le maintien de la distance sonde-échantillon constante.
- Dans une deuxième configuration, le contrôle de la distance est réalisé à partir de l'attraction verticale de la sonde par la surface de l'échantillon. La sonde est ici fixée à l'extrémité d'un levier élastique. Cet effet est à la base du fonctionnement des microscopes de type **AFM** ("*Atomic Force Microscopy*"). Afin de contrôler la force d'attraction effectuée par la surface de l'échantillon deux méthodes peuvent être utilisées. La première repose sur la détection directe de la déflexion subie par le levier due aux forces atomiques d'attraction/répulsion entre la sonde et la surface de l'échantillon ; ce fonctionnement est couramment appelé "*mode contact*". La seconde consiste à alimenter le levier de manière intermittente de sorte que la sonde vibre perpendiculairement à la surface, sans la toucher physiquement ; on parle alors de "*mode tapping*" [9]. Comme pour le mode "*shear force*", l'amplitude de la vibration sera perturbée au cours de l'approche de la surface.

Finalement, le positionnement de la sonde dans la région du champ proche est réalisé grâce aux développements, des dispositifs mécaniques et électroniques, et des techniques de traitement des signaux, capables de détecter avec une grande sensibilité la perturbation de la sonde produite par la présence des détails topographiques de l'objet, ceci à quelques dizaines de nano-mètres de la surface dans la zone du champ proche.

1.4 Fabrication des sondes destinées au champ proche optique

Après avoir maîtrisé le contrôle de la distance sonde-échantillon, la plus petite possible (inférieure à 5 nm), la résolution est déterminée par l'interaction entre la sonde et le champ électromagnétique présent dans la zone champ proche. La sonde jouant un rôle actif du point de vue de la conversion des ondes évanescents en ondes radiatives, la connaissance de ses caractéristiques (géométriques et optiques) est déterminante pour l'interprétation et l'analyse de l'information dans les images. Pour cette raison, leur fa-

brication doit être faite d'une façon contrôlée et reproductible. D'une manière générale, un usinage postérieur peut être envisagé pour les adapter et/ou les optimiser suivant le mode de fonctionnement retenu. C'est pourquoi, de nombreux travaux font référence à la fabrication, à l'optimisation et à la caractérisation des sondes.

1.4.1 Rappels

Du point de vue de la résolution, contrairement à la microscopie classique, la microscopie optique en champ proche possède l'avantage de ne pas présenter de limites physiques. La seule limitation est de nature technologique, conditionnée par l'intégration de l'interaction sonde-champ électromagnétique; elle est donc seulement fixée par les dimensions de la sonde. Sachant qu'elle doit être de dimension sub-longueur d'onde, plus elle sera réduite, plus la résolution sera grande.

Le premier type de sonde proposé est fabriqué à partir d'une ouverture dans un écran métallique de dimension sub-longueur d'onde [10]. Actuellement, cette sonde, est généralement constituée d'une partie effilée, de dimension nanométrique, façonnée à l'extrémité d'une fibre optique; elle est couramment appelée *pointe*; elle peut être également obtenue par micro-fabrication d'une pointe sur un levier en silicium de type *AFM* ou à partir du coin d'une fine plaque de verre, de forme tétraédrique, soigneusement découpée, puis rapporté à l'extrémité d'un diapason employé pour la détection "shear force" [11, 12]. Cette sonde est utilisée sous le nom de "pointe tétraédrique" (voir figure 1.3).

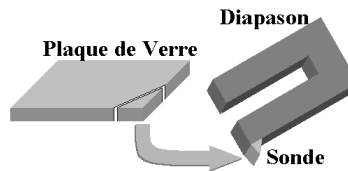


FIG. 1.3 – Schéma de fabrication d'une "pointe tétraédrique" [11, 12].

Les études menées sur l'influence des paramètres de la sonde, du point de vue de ses capacités détectrices [13, 14, 15], convergent et soulignent l'importance que joue l'extrémité de la pointe, à savoir les derniers microns. Des paramètres tels que la nature du matériau, l'état de la surface, l'angle du cône et le rayon de courbure de l'extrémité de la pointe vont définir les capacités de détection/émission et l'interaction entre la pointe et la surface.

1.4.2 Pointes fabriquées en extrémité de fibre optique

Parmi les techniques utilisées pour l'obtention d'une pointe effilée à l'extrémité de la fibre optique, "*l'attaque chimique*", et "*le chauffage-étirage*", ou une combinaison des

deux, sont les plus usuelles. Une technique plus récente consiste à greffer une pointe polymère sur l'extrémité clivée d'une fibre optique. Nous soulignerons dans la suite les avantages et les inconvénients de ces techniques.

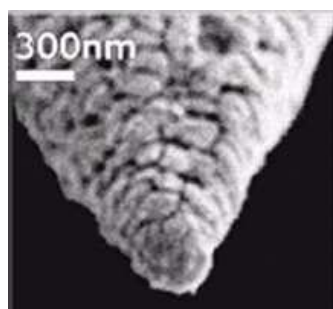
Attaque chimique

L'attaque chimique est une technique simple et peu coûteuse de fabrication des pointes diélectriques, qui consiste à immerger une fibre optique clivée dans une solution soigneusement ajustée d'acide hydro-fluoride HF à 40 %. La fibre est ainsi attaquée avec une vitesse d'environ $1 \mu m/mn$, et grâce à la formation d'un ménisque liquide le long de la fibre, le procédé conduit au façonnage d'une pointe conique et courte. Le coeur de la fibre, seulement attaqué en extrémité, permet une transmission de la lumière injectée jusqu'aux derniers micromètres, sans modification de son mode de propagation. Ceci constitue le principal avantage de cette technique.

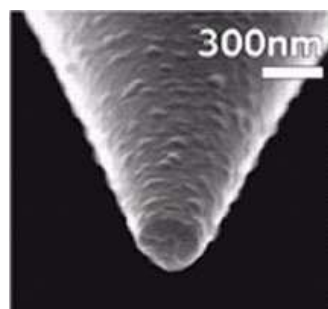
L'attaque simple, comme décrite ci-dessus, présente divers défauts. L'obtention de la pointe est un processus long, la présence d'impuretés dans la solution acide et les variations des conditions expérimentales (température, stabilité mécanique) influent sur la forme de la pointe. De plus, comme on peut le voir sur la figure 1.4(a), l'attaque produit des facettes sur la surface et au bout de la pointe, la rendant fragile et diffusante à son extrémité. Des améliorations de cette technique de fabrication, telles que l'utilisation d'une solution organique tamponnée, le recours à une gaine protectrice (tube etching), et la fabrication en plusieurs étapes, ont permis de contrôler la forme de la pointe et obtenir des états de surfaces satisfaisants. Notons que tous ces procédés utilisant l' HF sont très dangereux à manipuler.

L'angle du cône de la pointe et le diamètre de l'ouverture dépendent de la concentration de l'acide, de la température du bain, du matériau formant la fibre et du temps d'attaque, ainsi que du processus d'attaque. Par exemple, l'introduction d'un solvant comme solution tampon, va stopper l'attaque de l'acide sur la pointe, en formant une couche protectrice lorsque la pointe ne sera plus en contact avec le liquide. Un schéma de principe est présenté sur la figure 1.4(c). L'angle de la pointe est principalement déterminé par la hauteur du ménisque initial entre les deux solutions et la fibre juste après l'immersion de la fibre ; ces conditions dépendent fortement du solvant utilisé [16]. Muramatsu & *al.* [17] et Lazarev & *al.* [18] ont montré que le profil de la pointe peut être varié en appliquant un mouvement vertical sur la fibre pendant l'attaque chimique. Ceci rend possible la réalisation de divers profils de pointe en utilisant différents régimes dynamiques.

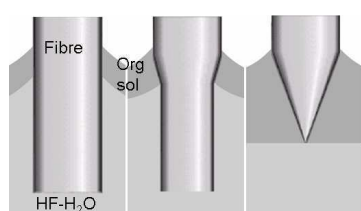
Utilisation d'une gaine protectrice ('tube etching') Comme nous l'avons déjà souligné, le défaut majeur de la fabrication par attaque chimique simple est le mauvais état de surface de la pointe (voir figure 1.4(a)), qui affecte la transmission de la lumière. Stöckle & *al.* [19] et Lambelet & *al.* [20] ont montré que l'utilisation d'une gaine protec-



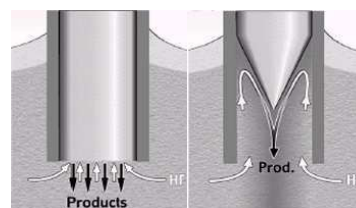
(a) Image *MEB* d'une pointe fabriquée par attaque chimique simple après dépôt d'une fine couche d'aluminium [19].



(b) Image *MEB* d'une pointe attaquée chimiquement par 'tube etching' après dépôt d'une fine couche d'aluminium [19].



(c) Schéma du processus avec une solution tampon proposé dans la référence [16].



(d) Schéma du processus 'tube etching' utilisant une gaine protectrice d'après les références [19, 20].

FIG. 1.4 – Images *MEB* de pointes fabriquées par attaque chimique et schéma de principe de fabrication par attaque chimique.

trice, qui peut être une fêrule céramique ou la propre gaine de la fibre, génère des courants de diffusion entre la gaine et la fibre permettant de transporter les produits de réaction loin de la région d'attaque. Le schéma de ce principe est rapporté sur la figure 1.4(d). La figure 1.4 (a,b) montre la différence entre les deux états de surface obtenus. Stöckle & *al.* ont montré que la nature de la fibre utilisée a également une grande influence sur l'état de surface de la pointe finale. Enfin, ils ont constaté que la concentration d' HF et la température de la solution influencent peu l'angle final du cône de la pointe.

Attaque sélective en plusieurs étapes Habituellement, la fibre optique est réalisée en silice, et la différence d'indice entre la gaine et le coeur, peut être obtenue par dopage au Germanium. Klini & *al.* [21] et Puygranier & *al.* [22] ont montré que dans ce cas, l'utilisation d'une solution comprenant du fluorure d'ammonium NH_4F (40 %), de l'acide hydro-fluoride HF (50 %) et H_2O permet d'obtenir une vitesse d'attaque différente pour le coeur et pour la gaine; cette différence dépend du rapport de volume entre NH_4F et HF . Il existe un rapport limite de 1.7 : 1 : 1 (NH_4F : HF : H_2O) pour lequel la vitesse d'attaque de la gaine est égale à la vitesse d'attaque du coeur. Pour une valeur supérieure, le coeur est attaqué plus lentement que la gaine, ce qui donne comme résultat une pointe de diamètre égale au diamètre du coeur de la fibre. Pour une valeur inférieure, on obtient une inversion des vitesses d'attaque et comme résultat une pointe inversée au centre de la fibre.

Un des inconvénients de la méthode en une seule étape est l'obtention d'un diamètre de gaine élevé, rendant possible le contact de la pointe avec l'échantillon au cours de son utilisation ultérieure. Mononobe & *al.* [23] ont proposé la fabrication de la pointe en plusieurs étapes pour éviter cet effet. Une première étape provoque essentiellement la réduction du diamètre de la gaine, et l'étape suivante celui de l'extrémité de la pointe. Finalement le coeur est attaqué, et une pointe avec deux (ou trois [24]) pentes différentes est obtenue. Cette technique a été utilisée pour la fabrication des pointes destinées à travailler en éclairage *UV*, pour augmenter l'efficacité de la transmission [25]. Nakamura & *al.* [26] ont réalisé une analyse par simulation *FDTD* afin d'optimiser les paramètres géométriques de ce type de pointes.

Chauffage-étirage

Pour cette technique, la fibre optique dépourvue de sa gaine protectrice est montée symétriquement sur deux rails alignés qui coulisent librement sans frottements. La partie postérieure des rails est attachée à un mécanisme qui maintient une tension constante sur la fibre et qui permet de déclencher un fort étirage sur la fibre (par exemple un électro-aimant). Dans la partie centrale des deux rails, un faisceau laser CO_2 est focalisé, assurant le chauffage de la fibre (l'utilisation d'un filament de tungstène est aussi possible). Le schéma de principe de la technique est présenté sur la figure 1.5.

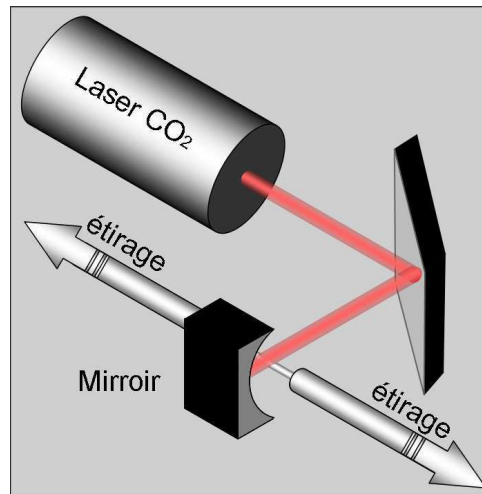


FIG. 1.5 – Schéma de principe du chauffage-étirage

Au-delà d'une certaine température la fibre commence à fondre et la tension provoque un étirement et un amincissement de la fibre. Quand la vitesse d'élongation de la fibre atteint une valeur déterminée, la source laser est coupée et un fort étirage est déclenché sur la fibre, provoquant la rupture de la partie effilée. On peut réaliser plusieurs cycles avant d'atteindre la rupture de la fibre, chaque cycle produisant un étirage et un amincissement donnés. Des systèmes d'imagerie ou des dispositifs permettant le suivi d'un signal de retour sur l'état de la fibre peuvent être ajoutés au dispositif initial. Ceci permet de contrôler

l'effet au cours du cycle et de suivre au plus près, en temps réel, la formation de la pointe. On parle alors du procédé "*d'étirage séquentiel à chaud*" [2, 27].

Cette méthode est rapide, les sondes obtenues présentent un excellent état de surface, mais la partie conique est relativement plus longue que celle obtenue par attaque chimique, environ 1 mm ; ce qui affecte la résolution latérale et l'efficacité de la transmission. La figure 1.6 présente l'image d'une pointe type obtenue par cette méthode. Gallacchi & *al.* [28] ont montré qu'il existe une relation entre la longueur de la pointe et la zone de chauffage : la longueur de la pointe est d'autant plus courte que la région de chauffage est étroite. L'utilisation d'une feuille de tungstène, traversée perpendiculairement par la fibre, permet de diminuer la région de chauffage de $\sim 1\text{ mm}$ à $\sim 200\text{ }\mu\text{m}$, et d'obtenir des pointes avec des angles d'environ 30 à 40° .

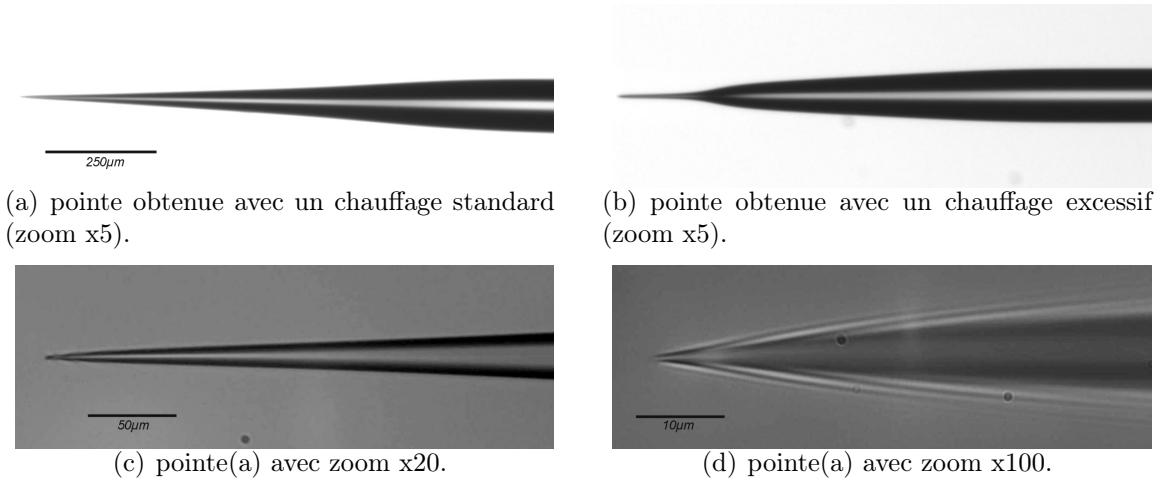


FIG. 1.6 – Image d'une pointe fabriquée par chauffage-étirage en une étape.

La reproductibilité dépend du contrôle précis et de la stabilité des paramètres de chauffage et d'étirage. Valaskovic & *al.* [29] ont analysé l'influence de ces paramètres sur la forme finale de la pointe. D'autre part Gallacchi & *al.* [28] ont montré comment jouer sur l'échauffement, pour obtenir une pointe avec un double cône de pentes différentes.

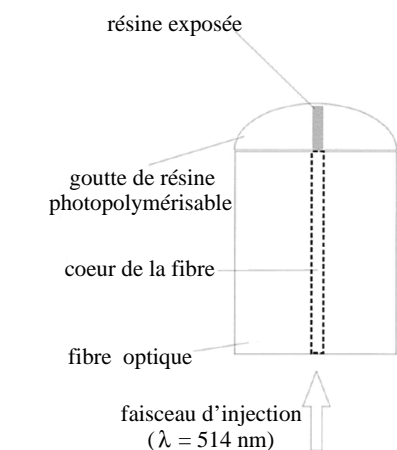
Au Département d'Optique de l'Institut *FEMTO-ST*, pour la fabrication des pointes par cette méthode, nous utilisons une étireuse commerciale *Sutter P-2000* (conçue d'origine pour l'étirage des micro-pipettes), programmable à l'aide de quatre paramètres : la puissance de sortie du faisceau laser, la vitesse d'élongation de la fibre à atteindre avant l'arrêt de la source de chauffage, le temps entre l'arrêt du chauffage et le déclenchement de l'étirage final, et enfin la force appliquée pour l'étirage. Malheureusement, il est très difficile de contrôler tous ces paramètres de manière précise afin d'obtenir une bonne reproductibilité des sondes. Néanmoins, le temps écoulé entre le début de la séquence d'étirage et la rupture de la fibre, délivré par le programme à la fin du processus, est un indice pertinent permettant de contrôler la reproductibilité de l'étirage et donc la forme de la pointe.

Une attaque chimique brève peut être ajoutée à l'étirage de la pointe. L'intérêt de cette attaque supplémentaire est qu'il est plus facile d'obtenir une pointe avec un rayon de courbure de 10 nm , à partir d'une pointe préformée avec un rayon de courbure de 200 nm , que par attaque direct d'une fibre de $125\text{ }\mu\text{m}$ diamètre. En plus, l'influence des paramètres externes, difficiles à contrôler pendant une attaque chimique complète, joue un rôle moins important compte tenu du temps d'attaque court. Finalement l'attaque chimique maintient la forme de la pointe pré-formée, et affecte peu la rugosité de la surface.

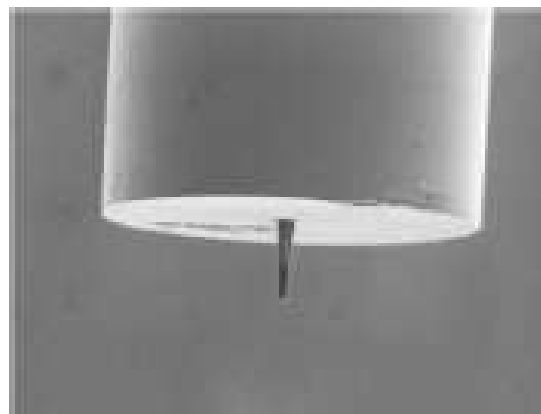
Une autre technique consiste à usiner la pointe à l'aide d'une polisseuse à l'origine adaptée à la fabrication de micro-électrodes, afin d'obtenir un diamètre à l'extrémité de taille nanométrique. En changeant l'angle de taille, des formes coniques avec différents angles peuvent être obtenues [30]. L'état surface dans ce cas est meilleur que celui obtenu par attaque chimique, mais, moins bon que par chauffage-étirage.

Photo-polymérisation

Cette méthode de fabrication, développée au *LNIO* de Troyes [31], permet de greffer une pointe polymère, à l'extrémité d'une fibre clivée, par utilisation d'une résine photosensible (généralement dans la région spectrale de 450 nm à 550 nm). Le schéma du principe de fabrication est montré sur la figure 1.7(a).



(a) Principe de fabrication d'une pointe polymère.



(b) Image *MEB* d'une pointe formée en bout de fibre.

FIG. 1.7 – Fabrication d'une pointe polymère d'après la référence [31].

Un faisceau lumineux (laser Argon), de longueur d'onde 514 nm , est injecté dans une fibre, de préférence monomode, et une goutte de résine est déposée en sortie de fibre, sur l'extrémité clivée. Après une exposition de 1 à 60 s, la résine est polymérisée, développée, laissant une pointe polymère induite par le faisceau lumineux et solidaire du cœur de la fibre (figure 1.7(b)).

Des expériences réalisées sur des fibres multi-modes ont permis de conclure que la forme de la pointe dépend fortement des caractéristiques du faisceau lumineux émis en sortie de fibre et des conditions d'exposition [32]. Il a été montré que l'existence de nombreux paramètres a comme avantage la fabrication de pointes de formes très variées.

1.4.3 Pointes sur micro-levier AFM

Une alternative intéressante pour la fabrication des sondes optiques est le recours aux possibilités offertes par le micro-usinage du silicium et de ses dérivés (principalement oxyde, nitrure). Ces techniques permettent d'envisager la fabrication collective et peu coûteuse, ainsi que la reproductibilité de fabrication.

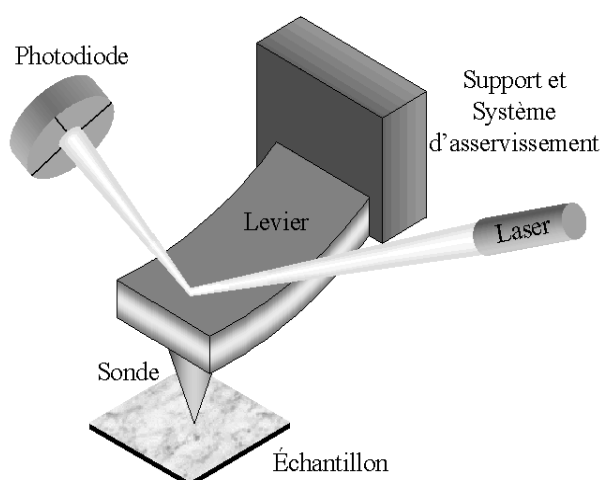


FIG. 1.8 – Schéma de fonctionnement des sondes de type *AFM*. Le faisceau laser et la photodiode permettent de contrôler la déflexion du levier.

L'emploi d'une architecture en levier possède comme avantage une tolérance en flexion appréciable, due au faible rapport épaisseur/longueur de la poutre, limitant ainsi les risques de rupture mécanique lors des déplacements sur la surface. Un autre avantage est la possibilité d'adapter diverses fonctions sur le support même du levier, par exemple, un capteur de force qui permet de déterminer la distance sonde échantillon, ou des actionneurs pour l'asservissement en position. La figure 1.8 représente le schéma de fonctionnement de ce type de sonde.

Micro-usinage du silicium

Le micro-usinage du silicium peut être réalisé selon deux types de gravure :

- *Gravure anisotrope* : la vitesse de gravure dépend des directions cristallographiques, s'appuyant sur des plans bien définis et permettant d'avoir un angle de gravure de

54.74° pour le Si orienté $\langle 100 \rangle$, ou des plans parfaitement verticaux pour le Si $\langle 110 \rangle$. La solution chimique la plus communément utilisée est l'hydroxide de potassium KOH .

- *Gravure isotrope* : le processus de gravure est alors un procédé très complexe qui ne tient plus compte de l'orientation cristallographique. Généralement on utilise une solution $HNO_3 - HF$ pour le silicium et BHF pour l'oxyde de silicium.

La figure 1.9 fournit une illustration du procédé de micro-usinage réalisé sur le silicium selon le type de gravure.

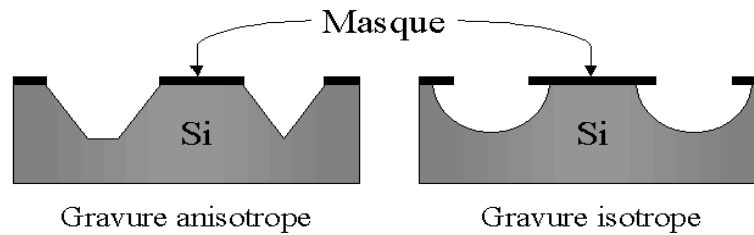


FIG. 1.9 – Résultats de gravure anisotrope et isotrope du silicium (Si orienté $\langle 100 \rangle$).

Fabrication de la sonde optique

De nombreuses méthodes de réalisation des sondes ont été développées utilisant les possibilités d'usinage du silicium. On peut presque affirmer que chaque groupe de recherche a sa propre technique de réalisation ; nous ne décrirons ici que quelques techniques de base.

- Une première possibilité concerne l'utilisation du silicium micro-usiné comme support pour la réalisation de la pointe. L'idée principale est la formation d'un puits pyramidal par gravure anisotrope KOH , à travers une ouverture carrée sur un substrat de silicium orienté $\langle 100 \rangle$. Ce puits va alors servir de préforme sur laquelle un matériau sera déposé pour obtenir une pointe présentant un angle d'ouverture de 54.74° . Cette technique offre la possibilité de réaliser des sondes avec divers matériaux, tels que le diamant [33, 34, 35, 36], l'oxyde de silicium [37], ou le chrome [38]. On peut aussi concevoir des sondes en combinant plusieurs matériaux ; par exemple, la résine polymère $SU - 8$ avec le chrome [39, 40], pour fabriquer une sonde métallisée, et même trois matériaux différents $Pt/SiO_2/Al$ [41] pour fabriquer une sonde avec une structure coaxiale.

Ensuite, la sonde est reportée soit sur une fibre optique [39, 40], soit sur une structure de type levier construite directement sur le substrat de silicium. Finalement la pointe est libérée en éliminant partiellement ou complètement le substrat de silicium par attaque chimique. On peut également déposer une fine couche de matériau spécifique "*self-assembled monolayer*" **SAM**, réduisant l'adhésion du matériau sur le substrat et permettant le décollage de la sonde sans endommager le support [39, 40].

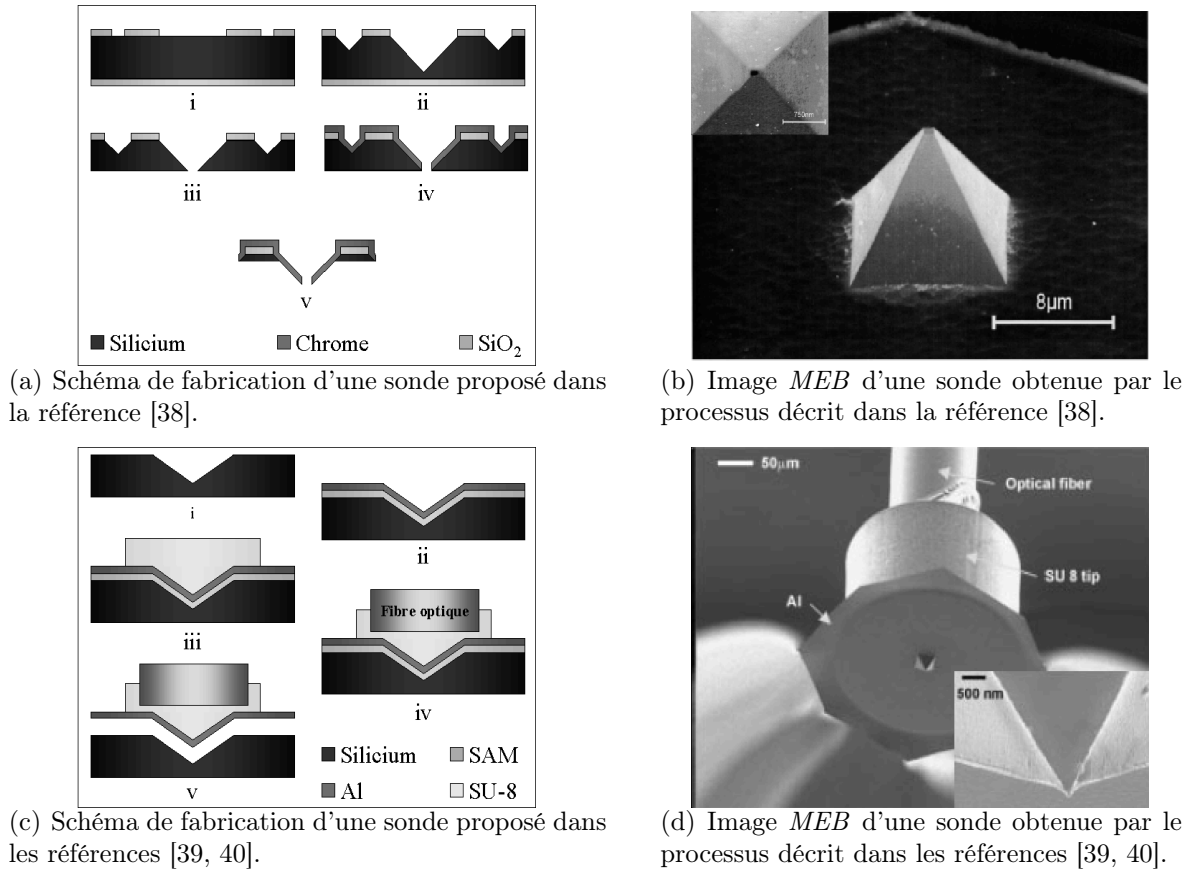


FIG. 1.10 – Processus de fabrication des sondes utilisant un substrat de silicium usiné comme préforme.

Ce moule pourra être alors réutilisé ultérieurement. La figure 1.10 montre les deux processus de fabrication ainsi que les résultats obtenus.

- D'autres procédés ont été retenus, exploitant la forme conique prise par des matériaux tels que quartz [42], le Si_3N_4 [43], Si [44, 45, 46], ou SiO_2 [47, 48], lors d'une gravure isotrope. Le matériau est généralement déposé sur le silicium, et une attaque chimique à travers un masque conduit à la formation d'un relief de forme conique. Ensuite, le levier est usiné de sorte que la sonde se trouve placée à l'extrémité du levier. La figure 1.11 présente le schéma de principe de cette méthode.

Finalement, le micro-usinage, pouvant être appliqué à d'autres types de matériaux tels que InP ou $GaAs$, permet la réalisation collective des sondes avec une grande reproductibilité par rapport à la fabrication unitaire à partir d'une fibre optique. Par rapport à tous ses avantages, le point faible de cette technique se trouve au niveau de la réalisation du guidage de la lumière vers l'extrémité de la pointe. L'éclairage peut être réalisé, soit en alignant un faisceau lumineux parallèlement à l'axe optique de la pointe [42, 37, 38], soit en déposant un guide optique sur le levier [43, 41], soit en intégrant la pointe fabriquée à l'extrémité d'une fibre optique clivée [39, 40]. Cette hybridation nécessite alors une grande

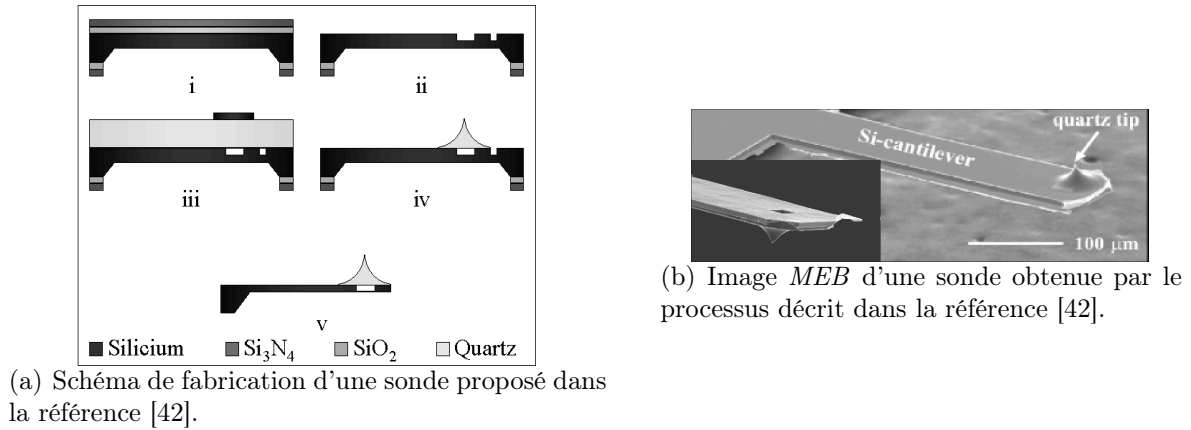


FIG. 1.11 – Processus de fabrication des sondes en utilisant les possibilités de gravure isotrope.

contrainte d'alignement pour la mise en œuvre de la sonde.

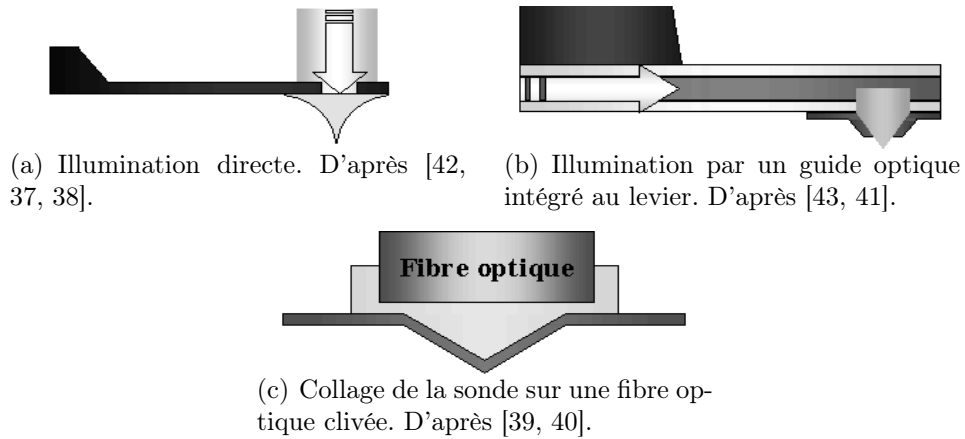


FIG. 1.12 – Différents types d'illumination utilisés avec les sondes micro-usinées.

1.5 Caractéristiques et optimisation des sondes

Une des contraintes de base de la microscopie optique en champ proche implique que la lumière transmise de la sonde vers l'échantillon, ou vice-versa, soit latéralement la plus confinée possible, afin de pouvoir exalter et/ou collecter localement les hautes fréquences de l'échantillon. Cette condition peut être réalisée de deux manières : ou la lumière passe à travers une petite ouverture réalisée en bout de sonde (sonde à ouverture), ou la sonde, de dimension sub-longueur d'onde, perturbe le champ proche de l'objet (sonde sans ouverture). De plus, pour des raisons d'efficacité, l'intensité lumineuse doit être la plus grande possible, dans la région de confinement. Novotny & *al.* [14], ont montré qu'il existe un compromis entre le confinement latéral et l'intensité lumineuse détectée. En particulier,

une augmentation du confinement latéral raccourcit la distance de décroissance des ondes évanescentes. On doit donc se placer au plus près de la surface, au risque de reporter une partie du signal topographique dans l'image optique. Dans ce cas, l'interprétation fiable des images optiques ne peut être obtenue qu'à partir de la connaissance, a priori, de l'échantillon.

De nombreux travaux ont permis de mieux comprendre le fonctionnement d'une sonde, l'influence de sa forme et la nature de son extrémité. Novotny & al. [49] ont proposé une modélisation de l'influence des paramètres liés à la sonde, basée sur la méthode "*Multiple Multipole*" **MMP**, pour trois types de pointes différentes : pointe diélectrique, pointe métallique avec et sans ouverture.

1.5.1 Sondes à ouverture

L'idée originale qui repose sur l'utilisation d'une ouverture sub-longueur d'onde dans un écran métallique a été largement déclinée depuis les travaux précurseurs de Synge [10]. D'une part, une pointe diélectrique recouverte d'une couche métallique agissant comme écran, est rapidement envisagée pour confiner la lumière jusqu'au bout de la sonde, dont l'ouverture peut être réalisée par usinage de l'extrémité, ou directement par un processus de micro-fabrication [38]. Un microscope travaillant suivant ce mode est appelé "*aperture scanning near-field microscope*". D'autre part, Ebbesen & al. [50, 51] ont proposé d'augmenter la transmission optique à travers l'ouverture métallique, par couplage d'un mode plasmon de surface, en additionnant un motif périodique sur la surface de l'écran métallique. Matteo & al. [52] exploitent les modes plasmon de surface possibles pour une ouverture en forme de "*C*".

Fabrication d'une ouverture à l'extrémité de la sonde

La fabrication d'une ouverture à l'extrémité d'une sonde s'effectue en deux étapes : une première étape consiste à métalliser la pointe, la seconde à démétalliser son extrémité. La résolution de la sonde est alors déterminée par la profondeur de peau du métal utilisé.

Métallisation La métallisation de la fibre est généralement réalisée par évaporation thermique sous vide et plus rarement par pulvérisation cathodique. Pour les sondes fabriquées à partir d'une fibre optique, l'homogénéisation de la couche métallique est assurée par une rotation constante de la fibre autour de son axe au cours du dépôt.

Les métaux les plus souvent utilisés sont l'aluminium pour son fort coefficient d'absorption et plus récemment l'or ou l'argent pour leurs possibilités d'exaltation de l'effet plasmon [53, 54]. Les sondes peuvent être aussi recouvertes par une couche magnétique

de *CoCr* [55], ces dernières sont alors destinées à la microscopie de forces magnétiques *MFM*.

Démétallisation Pour les sondes fabriquées en extrémité de fibre optique, l'ouverture peut être réalisée directement au cours de la métallisation, en inclinant la fibre à environ 75° par rapport au flux incident (technique dite "d'ombrage"); cette méthode n'est vraiment applicable qu'aux sondes classiques de forme conique.

D'autres procédés sont utilisés pour la fabrication de l'ouverture à partir d'une pointe complètement métallisée. Matsumoto & *al.* [56] proposent de recouvrir la pointe avec une résine photosensible : l'extrémité de la pointe est exposée puis développée, la résine jouant le rôle de masque au moment du dégagement de la couche métallique à l'extrémité de la pointe par attaque chimique.

Un procédé par électrolyse solide a été présenté par Mulin & *al.* [57] : une différence de potentiel est appliquée entre la pointe métallisée et une couche métallique déposée sur la face inférieure d'une plaque de verre, et un léger contact avec la plaque provoque la démétallisation mécanique de l'apex.

Finalement, l'usinage par un faisceau d'ions focalisé (*FIB*) permet d'obtenir des ouvertures d'une grande qualité. Deux techniques peuvent être envisagées : une première en réalisant un usinage cylindrique dans l'axe de l'apex [58], une seconde, en tronçonnant l'extrémité de la pointe métallisée [59, 60, 61, 55].

Caractéristiques de sondes à ouverture

Les analyses réalisées par Novotny & *al.* [49] ont montré que, dans le cas d'une pointe métallisée avec ouverture, les modes propagatifs deviennent rapidement évanescents et l'intensité présente un fort affaiblissement à mesure qu'on se rapproche de l'extrémité de la pointe, dû à l'atténuation produite par le métal. Le principal désavantage de ce type de sonde est alors la faiblesse du signal d'illumination (ou de collection) qui varie fortement avec la réduction du diamètre de l'ouverture. Finalement le champ est fortement exalté sur les bords internes de l'ouverture et le champ en sortie de la pointe a la forme de deux taches lumineuses dont la distance est fixée par le diamètre de l'ouverture.

Un étude plus récente menée par Dereux & *al.* [62, 63] montre qu'une pointe à ouverture métallisée avec un métal noble (présentant des résonances plasmon dans le visible), tel que l'or ou l'argent, permet de favoriser la détection du champ magnétique associé à la distribution du champ proche pour une longueur d'onde et une épaisseur de métal bien définies. Les images optiques sont alors distinctes pour différentes longueurs d'onde d'éclairage. Une étude analytique [64] des modes propres présents sur les structures de géométrie cylindrique permet de conclure que c'est l'excitation des modes plasmon circulaires

au bout de la pointe, qui favorise la détection du champ magnétique ou du champ électrique. Cette étude sera reprise ultérieurement dans ce document, dans le cas de l'analyse complète du comportement en champ proche optique d'un anneau métallique nanométrique.

1.5.2 Sondes sans ouverture

Généralement ces sondes sont constituées d'un matériau homogène, un diélectrique (pointe diélectrique) ou un métal (pointe métallisée sans ouverture), ou un semi-conducteur.

Caractéristiques des sondes sans ouverture

Dans leurs travaux, Novotny & *al.* [49] ont retenu deux sortes de sondes sans ouverture, une pointe diélectrique et une pointe métallisée. Leurs principales conclusions sont les suivantes :

- pour une pointe complètement diélectrique, le champ s'élargit, à mesure que l'on se rapproche de l'extrémité de la pointe : ceci permet de prévoir un flux de champ en sortie, intense, mais très peu confiné.
- en comparaison avec une sonde métallique à ouverture, une pointe complètement métallisée présente aussi un fort affaiblissement d'intensité, à la différence que le maximum d'intensité reste centré sur l'axe de la pointe. On peut également attendre de meilleurs performances en réduisant la taille de la pointe (diffraction), ou en exploitant la possibilité de générer des plasmons de surface. En effet, la sonde sans ouverture utilisée comme une pointe perturbative, permet une interaction locale avec le champ évanescent de l'objet. A la différence de l'utilisation en mode collection, les ondes évanescentes sont converties en ondes progressives, non transmises par la sonde elle-même, mais collectées en champ lointain. Le principal avantage de ce type de sonde vient du fait que la résolution n'est plus limitée par la taille de l'ouverture ou par la profondeur de peau du métal, mais par la finesse de la pointe. Comme dans le cas des pointes à ouverture, en recouvrant complètement une pointe diélectrique avec une couche de métal noble, il est possible d'exploiter l'effet de résonance plasmon, en utilisant une longueur d'onde visible, fonction de l'épaisseur de la couche déposée [53, 54, 65].

Greffage de nanoparticules à l'extrémité de la pointe

De récents développements technologiques permettent de fabriquer et de déposer des nanoparticules au bout d'une pointe, dans le but de favoriser l'exaltation ou l'excitation

de la lumière en sortie, et donc rendre la sonde plus performante. Actuellement, deux techniques sont développées mettant à profit le greffage de nano-particules : la génération de plasmon et la microscopie de fluorescence.

- Les nanoparticules de métaux nobles présentent une extinction optique anormale dans le visible, due à l'oscillation collective des électrons de la particule ; ce phénomène appelé "*Localized Plasmon Surface*" **LPS** dépend de la taille et de la forme de la structure. Sqalli & al. [66] montrent que le greffage d'une particule d'or à l'extrémité de la pointe joue le rôle d'une nano-antenne rayonnante ; l'effet du *LSP* augmente l'exaltation, et conduit à une homogénéisation de la polarisation du champ diffracté.

Remarque : L'objet de ce travail se situera dans le prolongement de cette approche, où il sera proposé dans la suite du travail, l'utilisation d'une structure annulaire en or (à la place d'une particule métallique), capable de privilégier, sous certaines conditions d'illumination (polarisation et longueur d'onde), la détection ou l'exaltation d'une des composantes du champ électrique et/ou magnétique.¹

- Une autre application propose de placer des molécules fluorescentes par greffage à l'extrémité de la pointe. Le décalage spectral entre la lumière d'excitation et le rayonnement fluorescent, réémis par la particule, permet de réaliser un filtrage du fond continu, et par conséquent une amélioration sensible du rapport signal-bruit. Plus récemment avec l'introduction de la technique de "*fluorescence resonance energy transfer*" **FRET**, où la particule greffée est utilisée pour exciter la fluorescence d'une particule sur l'échantillon, la résolution spatiale n'est pas imposée par la taille de la particule mais par la valeur caractéristique du rayon de Förster, se situant entre 2 et 8 nm [67].

1.6 Conclusion

L'objectif de ce chapitre a été de rappeler les éléments de formation des images en microscopie optique et le rôle important joué par la sonde dans le processus de transfert de l'information contenue dans la région du champ proche. Ceci justifie le grand nombre de travaux réalisés sur les sondes, leurs conceptions, leurs caractéristiques et leurs optimisations.

L'étude des sondes a été rapportée d'une manière volontairement incomplète, de nombreux développements n'ayant pas été abordés dans ce chapitre. Il existe un large savoir

¹Le comportement des antennes de géométrie annulaire en électromagnétisme classique (ondes radio, micro-ondes et infrarouge) étant par ailleurs bien connu, nous chercherons à analyser les avancées produites dans d'autres domaines de l'électromagnétisme, et à les transposer dans le domaine visible de l'optique.

faire autorisant divers types de sondes, de géométries et de compositions variées. En particulier, nous avons montré que la résolution n'était pas seulement liée aux dimensions de la sonde, mais également à sa nature et aux conditions d'utilisation. Globalement, si le développement des sondes a permis d'élargir la connaissance de leur mode de fonctionnement, le problème de la compréhension du processus de formation des images en microscopie n'est pas totalement résolu. La réponse à la question "*quelle est l'information transmise par la sonde ?*" reste encore incomplète.

Actuellement, au-delà des développements technologiques avancés permettant un usinage sophistiqué des sondes (lithographie e-beam ou ion-beam, usinage *FIB*) les études tentent de prendre en compte la nature vectorielle du champ électromagnétique. En particulier, les études s'orientent dans des voies non encore explorées telles que l'étude de l'influence de la polarisation du faisceau d'éclairage, du filtrage des composantes électriques et magnétiques du champ (déjà démontré pour les pointes diélectriques par Grosjean & *al.* [68]) et du rôle complet joué par la sonde, pour comprendre et optimiser son fonctionnement et ses performances.

Chapitre 2

Antennes et champ proche

2.1 Introduction

Nous avons abordé dans le chapitre précédent les principes de base de la microscopie optique en champ proche (*SNOM*), et exposé les contraintes expérimentales de développements de cette technique d'inspection. En particulier, nous avons décrit le rôle important joué par la sonde dans le processus de formation des images, en mode collection et/ou en mode émission. Au-delà de la limitation qu'elle apporte dans les images, elle intervient directement dans le processus de formation de l'image, rendant impossible la détermination d'une fonction d'appareil : cette caractéristique est un obstacle déterminant dans l'analyse et l'interprétation des images expérimentales. Aussi, les études actuelles visent non seulement l'optimisation des performances des sondes, mais la compréhension globale de leur fonctionnement.

L'idée proposée au cours de ce travail est de s'appuyer sur les concepts généraux de l'électromagnétisme, et de tenter de définir une sonde comme un émetteur et/ou un capteur de champ, c'est à dire une antenne, et de tirer bénéfice des connaissances que l'on possède sur leurs modes de fonctionnement dans d'autres domaines de longueur d'ondes que celui des ondes visibles qui nous intéresse en priorité. Ainsi, le greffage d'une particule métallique sur une pointe diélectrique, utilisée comme sonde optique, constitue un premier exemple simple d'antenne. Il existe divers types d'antenne telles que : les antennes filaires, les fentes, les plaques, les ouvertures ou les cornets, les réflecteurs, ... L'utilisation de tels dispositifs peut être précisée en faisant référence à leur conception, leur fonctionnalisation et leur optimisation en termes de directivité et de capacité de confinement du champ. De plus, les antennes sont classées selon deux types, électriques ou magnétiques, et leur géométrie prend en compte le caractère vectoriel du champ détecté ou rayonné. Nous allons donc nous intéresser dans la suite, à l'étude vectorielle des antennes filaires, et plus particulièrement des antennes dipolaires, placées dans un champ électromagnétique.

Nous débuterons ce chapitre par une analyse succincte de deux antennes élémentaires, le dipôle électrique et le dipôle magnétique (*l'antenne en boucle*). Pour une présentation plus approfondie, nous renvoyons à des ouvrages sur la théorie générale des antennes [69, 70, 71, 72]. Ensuite, nous ferons un bref exposé sur l'amélioration des sondes locales développées en champ proche en appliquant la théorie des antennes, ceci dans le domaine des micro-ondes et de l'infrarouge, où les contraintes de fabrication des sondes sont plus larges en raison des longueurs d'onde utilisées. Nous terminerons avec la présentation du phénomène de plasmon et nous montrerons comment cet effet permet le développement du concept d'antenne et son utilisation dans le domaine visible.

2.2 Rappels sur les antennes

Une antenne est un dispositif permettant de rayonner (émetteur) ou de capter (récepteur) les ondes électromagnétiques généralement constitué d'un conducteur électrique plus ou moins complexe qui se définit par des paramètres spécifiques : bande de fréquence d'utilisation, polarisation, directivité et diagramme de rayonnement, forme et dimensions, types et mode d'alimentation. Les antennes présentent plusieurs caractéristiques intéressantes, telles que, étroite largeur de bande, importante exaltation et grande directivité du champ rayonné. Une antenne dipolaire électrique est généralement formée en appliquant des courants opposés sur deux fils fins conducteurs placés en regard, alors qu'une antenne dipolaire magnétique est constituée d'un fil mince fermé en boucle, dans lequel circule un courant.

2.2.1 Champ statique du dipôle électrique et magnétique

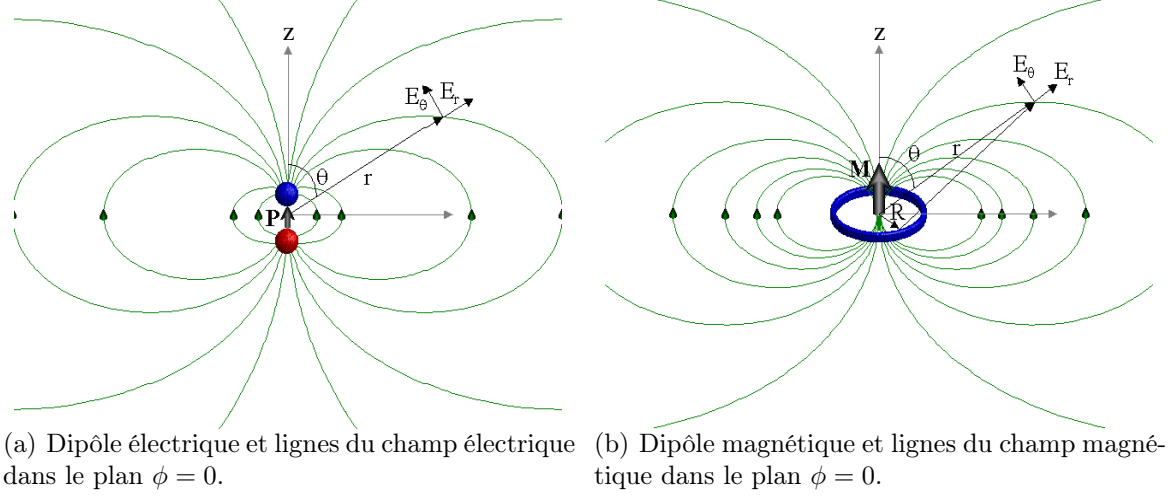
Dipôle électrique

Parmi les différentes possibilités de génération d'un champ électrique, la plus simple est le dipôle électrique représenté sur la figure 2.1(a). Elle consiste en une paire de charges de signe contraire $+q$ et $-q$, séparées par une distance d . En effectuant la somme vectorielle des champs électriques produits par chacune des charges, et en définissant le moment dipolaire électrique comme étant égale à $\mathbf{P} = q\mathbf{d}$ (\mathbf{d} étant orienté de la charge $+$ vers la charge $-$), le champ électrique \mathbf{E} au point P est donné par l'expression 2.1.

$$\mathbf{E} = \frac{|\mathbf{P}|}{4\pi\epsilon_0} \left[\frac{2\cos\theta}{r^3}\hat{r} + \frac{\sin\theta}{r^3}\hat{\theta} \right], \quad (2.1)$$

dans laquelle r ($\gg d$) est la distance du point P au centre du dipôle, ϵ_0 la constante diélectrique du vide, \hat{r} et $\hat{\theta}$ les vecteurs unitaires en coordonnées sphériques (r, θ, ϕ) . Comme

il n'existe pas de mouvement de charge, le champ magnétique est nul. La figure 2.1(a) représente la distribution du champ électrique [69, 70, 71, 72] pour ce type d'antenne.



(a) Dipôle électrique et lignes du champ électrique dans le plan $\phi = 0$. (b) Dipôle magnétique et lignes du champ magnétique dans le plan $\phi = 0$.

FIG. 2.1 – Dipôle électrique et dipôle magnétique en régime statique.

Dipôle magnétique

Le dipôle magnétique est associé au mouvement d'une charge sur une orbite circulaire de rayon R comme représenté sur la figure 2.1(b). En introduisant le moment dipolaire magnétique pour une spire $\mathbf{M} = I\pi R^2 \hat{z}$ (où I est l'intensité de courant due au mouvement de la charge), la distribution de courant est définie par son rotationnel $\mathbf{J} = \nabla \times \mathbf{M}$, et le champ magnétique \mathbf{H} est égal à [69, 70, 71, 72] :

$$\mathbf{H} = \frac{|\mathbf{M}|}{4\pi} \left[\frac{2 \cos \theta}{r^3} \hat{r} + \frac{\sin \theta}{r^3} \hat{\theta} \right], \quad (2.2)$$

Comme la charge parcourt une trajectoire fermée, la divergence de la charge est égale à zéro, par conséquent, le champ électrique est nul. On remarque donc que la structure du champ obtenu présente une ressemblance avec le champ calculé pour un dipôle électrique (équation 2.1), à condition de faire les changements $\mathbf{E} \rightarrow \mathbf{H}$, $\mathbf{P} \rightarrow \mu_0 \mathbf{M}$, et $\varepsilon_0 \rightarrow \mu_0$.

2.2.2 Rayonnement d'un dipôle oscillant

Rayonnement du champ électromagnétique par des sources oscillantes

On s'intéresse ici au champ électromagnétique rayonné par une distribution oscillante harmonique quelconque de courants et de charges. Selon le principe de Huygens, les sources

primaires du champ électromagnétique (courants et charges), rayonnent dans l'espace des ondes sphériques, dont la propagation obéit à une fonction de la forme $\exp(-\imath wr/c)/r$, r est la distance entre la source et le point d'observation, w la pulsation de l'oscillation, c la vitesse de la lumière ; on en déduit l'expression d'un potentiel vecteur et d'un potentiel scalaire

- à partir de la définition de la densité de courants oscillants dans le temps $\mathbf{J}(\mathbf{r}', t) = \mathbf{J}_0(\mathbf{r}') \exp(\imath \omega t)$, où \mathbf{J}_0 désigne l'amplitude complexe de la densité de courant, le potentiel vecteur est donné par la relation :

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \frac{\mu_0}{4\pi} e^{\imath \omega t} \int \frac{\mathbf{J}_0(\mathbf{r}') e^{-\imath k|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} d^3\mathbf{r}'. \quad (2.3)$$

- et par la conservation de la charge, la répartition de courant est nécessairement accompagnée d'une densité de charges $\rho(\mathbf{r}', t) = \rho_0(\mathbf{r}') \exp(\imath \omega t)$, elle aussi oscillante à la pulsation ω . En écrivant l'équation de continuité :

$$\begin{aligned} \nabla \cdot \mathbf{J} + \frac{\partial \rho}{\partial t} &= 0 \\ \nabla \cdot \mathbf{J}_0 &= \imath \omega \rho_0, \end{aligned} \quad (2.4)$$

le potentiel scalaire s'écrit alors :

$$\varphi(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} e^{\imath \omega t} \int \frac{\rho_0(\mathbf{r}') e^{-\imath k|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} d^3\mathbf{r}'. \quad (2.5)$$

Rayonnement d'un dipôle électrique oscillant

Reprenons le cas d'un dipôle électrique composé de deux charges opposées q , séparées par une distance d très inférieure à la distance d'observation, comme dans le cas de la figure 2.1(a). Supposons que q varie au cours du temps par application d'un courant d'amplitude constante I_0 circulant le long de l'axe z entre les charges, on peut définir la distribution de courant en fonction du moment dipolaire électrique \mathbf{P} :

$$\mathbf{J}_0(\mathbf{r}') = I_0 d \hat{z} = \frac{\partial q}{\partial t} d \hat{z} = \frac{\partial P}{\partial t} d \hat{z} = \imath \omega P \hat{z}. \quad (2.6)$$

En tenant compte de la symétrie de révolution du système autour de l'axe z , le potentiel électromagnétique produit par ce dipôle, appelé "*dipôle de Hertz*", s'obtient en calculant d'abord le potentiel vecteur \mathbf{A} , à partir de l'équation 2.3, créé par la distribution de courant donnée par l'expression 2.6,

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \frac{\imath \mu_0 \omega P}{4\pi r} \left(\cos \theta \hat{r} - \sin \theta \hat{\theta} \right) e^{-\imath(kr - \omega t)}. \quad (2.7)$$

On en déduit ensuite le potentiel scalaire à l'aide de la condition de jauge de Lorentz :

$$\phi(\mathbf{r}, t) = -\frac{P k^2}{4\pi\epsilon_0} \left[\frac{1}{\imath kr} + \frac{1}{(\imath kr)^2} \right] \cos \theta e^{-\imath(kr - \omega t)}. \quad (2.8)$$

A partir du potentiel électromagnétique, on obtient la distribution de champ électrique et magnétique :

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= -\nabla\phi - \frac{\partial\mathbf{A}}{\partial t} = -\frac{\imath P k^3}{4\pi\epsilon_0} \left\{ \left[\frac{2}{(\imath kr)^2} + \frac{2}{(\imath kr)^3} \right] \cos \theta \hat{r} \right. \\ &\quad \left. + \left[\frac{1}{\imath kr} + \frac{1}{(\imath kr)^2} + \frac{1}{(\imath kr)^3} \right] \sin \theta \hat{\theta} \right\} e^{-\imath(kr - \omega t)} \\ \mathbf{H}(\mathbf{r}, t) &= \frac{1}{\mu_0} \nabla \times \mathbf{A} = -\frac{\imath P k^3 c}{4\pi} \left[\frac{1}{\imath kr} + \frac{1}{(\imath kr)^2} \right] \sin \theta e^{-\imath(kr - \omega t)} \hat{\varphi}. \end{aligned} \quad (2.9)$$

La figure 2.2(a) représente le rayonnement associé au dipôle. Si $\omega = 0$ dans l'expression 2.9, ce qui veut dire qu'il n'existe pas de variation temporelle de la charge, nous retrouvons les champs calculés pour un dipôle électrique statique de l'équation 2.1 (\mathbf{A} et \mathbf{H} sont égaux à zéro).

Le dipôle de Hertz se compose alors d'un fil très court par rapport à la longueur d'onde, dans lequel la distribution de courant est considérée uniforme. Il s'agit d'une antenne élémentaire parfois prise comme source de référence, utilisée pour calculer le champ rayonné par des antennes filaires, considérées alors comme une juxtaposition d'éléments dont chacun constitue un doublet.

Dipôle demi-longueur d'onde Le rayonnement d'un dipôle électrique est optimal à la résonance, quand sa longueur vaut $\lambda/2$: on ne peut plus dans ce cas négliger la variation de courant le long du fil. La distribution de courant est décrite par une demi-période de sinusoïde. Le diagramme de rayonnement est représenté sur la figure 2.2(b).

Une configuration plus complexe est celle de l'antenne réseau. Le principe est basé sur l'addition des dipôles élémentaires, afin d'améliorer le rendement de l'antenne. L'antenne "Yagi-Uda", utilisée pour la réception du signal de télévision est l'antenne la plus connue (voir la figure 2.2(d)).

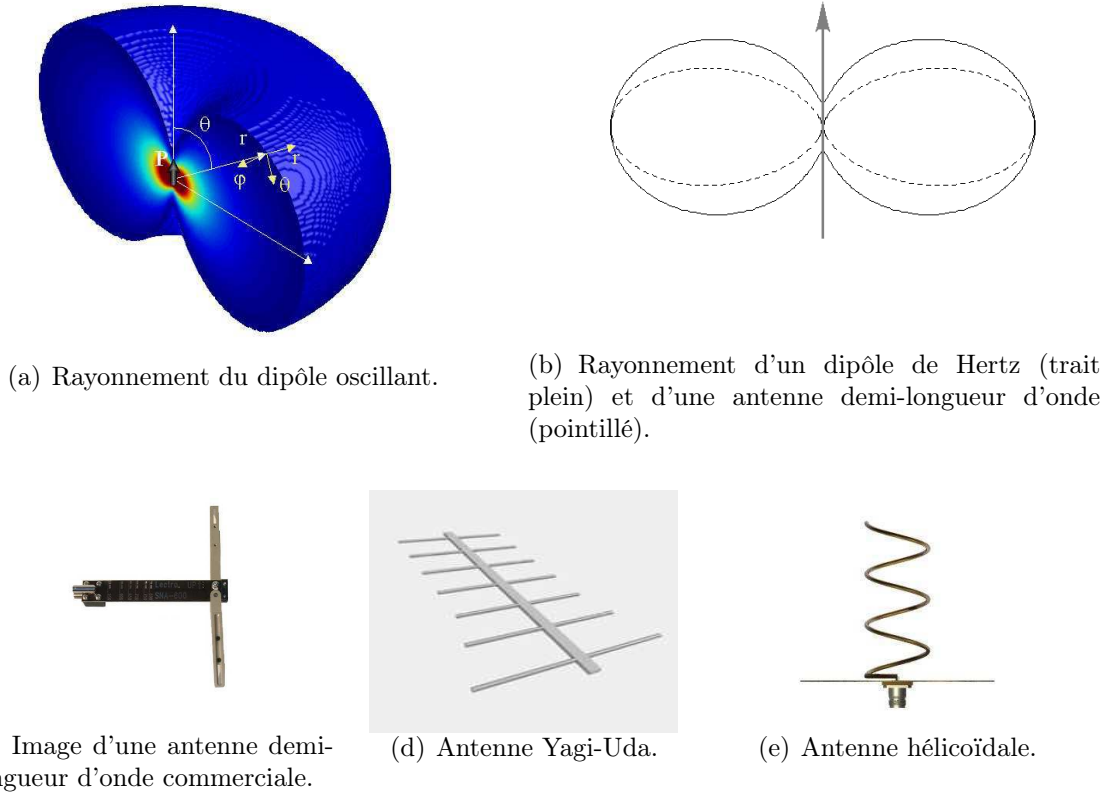


FIG. 2.2 – Rayonnement du dipôle oscillant et quelques antennes filaires caractéristiques.

Rayonnement d'un dipôle magnétique oscillant

Un dipôle magnétique oscillant est un circuit émetteur en boucle, parcouru par un courant oscillant, où le rayon R est très inférieur à la distance d'observation (voir la figure 2.1(b)). Comme dans la section 2.2.1, en définissant la distribution de charge comme le rotationnel du moment dipolaire magnétique dans l'équation 2.3, on peut écrire le potentiel vecteur comme :

$$\begin{aligned}
 \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) &= \frac{\mu_0}{4\pi} e^{i\omega t} \int \frac{\nabla \times \mathbf{M}(\mathbf{r}') e^{-ik|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} d^3\mathbf{r}' \\
 &= \frac{\mu_0}{4\pi} |\mathbf{M}| k^2 \left[\frac{1}{i kr} + \frac{1}{(i kr)^2} \right] \sin \theta e^{-i(kr-\omega t)} \hat{\varphi}.
 \end{aligned} \tag{2.10}$$

Comme la densité de courants \mathbf{J}_0 est orientée selon $\hat{\varphi}$, et ne dépend pas de φ , alors le potentiel scalaire est nul. On obtient alors la distribution de champ électrique et magnétique :

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} = \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon}} \frac{|\mathbf{M}| k^3}{4\pi} \left[\frac{1}{i kr} + \frac{1}{(i kr)^2} \right] \sin \theta e^{-i(kr - \omega t)} \hat{\phi} \\
\mathbf{H}(\mathbf{r}, t) &= \frac{1}{\mu_0} \nabla \times \mathbf{A} = -\frac{i |\mathbf{M}| k^3}{4\pi} \left\{ \left[\frac{2}{(i kr)^2} + \frac{2}{(i kr)^3} \right] \cos \theta \hat{r} \right. \\
&\quad \left. + \left[\frac{1}{i kr} + \frac{1}{(i kr)^2} + \frac{1}{(i kr)^3} \right] \sin \theta \hat{\theta} \right\} e^{i(\omega t - kr)} \quad . \quad (2.11)
\end{aligned}$$

Les distributions de champ présentent la même structure que pour le dipôle électrique, en remplaçant $\mathbf{E} \rightarrow \mathbf{H}$, $\mathbf{P} \rightarrow \mu_0 \mathbf{M}$, et $\varepsilon_0 \rightarrow \mu_0$. Par conséquent, le rayonnement est similaire à celui du dipôle électrique oscillant, représenté sur la figure 2.2(a), avec une inversion entre le champ électrique et magnétique. Comme dans le cas du dipôle hertzien, si l'on regarde le cas stationnaire en faisant $k = 0$ dans l'équation 2.11, on retrouve le champ magnétique donné par l'expression 2.2. Witherside & al. [73] ont étudié ce type d'antenne, et Kanda [74] a étudié les variations de la fréquence de résonance en fonction de la géométrie de l'antenne. On peut envisager également une antenne réseau, sur le principe de l'antenne Yagi-Uda, en additionnant des dipôles élémentaires magnétiques afin de rendre le rayonnement plus directif ; citons l'exemple de la géométrie spécifique de l'antenne dite "*hélicoïdale*", représentée sur la figure 2.2(e).

Finalement, ces observations nous amènent à classer les antennes filaires suivant deux types. Une antenne composée de deux dipôles se comporte comme un dipôle électrique, par contre une antenne qui présente une géométrie fermée circulaire (rectangulaire ou en spirale) se comporte comme un dipôle magnétique. Tout ceci est conditionné par le fait que dans les deux cas, la dimension doit rester très faible par rapport à la fréquence d'oscillation.

Les prolongements des travaux s'appuyant sur la notion de dipôle électrique et magnétique se retrouvent dans une thématique récente, celle des "*métamatériaux*", énoncée pour la première fois par Veselago [75] ; depuis, de nombreuses études ont été réalisées dans cette nouvelle perspective [76, 77, 78, 79]. Les métamatériaux reposent sur une structuration d'éléments résonants : des dipôles électriques pour le champ électrique et des "*split ring resonators*" (**SRR**) pour le champ magnétique. Un exemple donné par Weiland & al. [76] est repris dans la figure 2.3(a). Cette structuration est réalisée de sorte que le comportement global présente une valeur négative pour ε et pour μ , dans une plage de fréquences liée aux dimensions des éléments. Pour cette raison, ces matériaux sont souvent appelés matériaux "*main gauche*" ou matériaux ayant une "*réfraction négative*". La figure 2.3(b), montre la structuration complète envisagée.

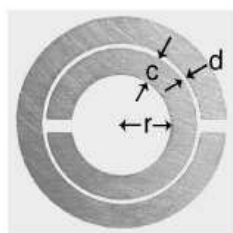
(a) Élément résonnant magnétique *SRR*.(b) Structure périodique proposée par Weiland & *al.* [76].

FIG. 2.3 – Un exemple de métamatériau

2.3 Antennes dipolaires dans le champ proche

Les antennes sont utilisées couramment dans les dispositifs de transmission et de réception comme les téléphones mobiles, portables, stations d'émission de radio et télévision, etc. C'est le cas en particulier des antennes dipolaires qui trouvent des applications dans différents domaines de longueur d'onde. L'intérêt porte plus précisément dans le cadre de ce travail sur leur utilisation comme sondes locales en microscopie champ proche. Une revue générale des possibilités des sondes locales pour le champ proche est réalisée par Rosner & *al.* [80].

2.3.1 Champ proche en micro-ondes

La miniaturisation des dispositifs conduit à la fabrication de circuits intégrés micro-ondes de plus en plus compacts et complexes. Cette complexité vient en partie de la quantité de composants élémentaires ou de modules de taille sub-longueur d'onde, disposés à la surface du circuit. La connaissance complète, d'une part du couplage entre les composants, et d'autre part de l'influence du boîtier et des connexions, devient indispensable, mais très difficile à réaliser avec des systèmes d'inspection en champ lointain. Le développement des systèmes d'inspection en champ proche, permettant d'avoir une meilleure résolution, s'imposent dans ces conditions.

Les sondes locales en champ proche dans le domaine des micro-ondes peuvent être de simples systèmes de guidage ou des structures à cavité résonante, généralement couplée à l'extrémité d'une sonde. Dans ce domaine spectral, leur utilisation est simplifiée par les facilités technologiques de réalisation de sondes micrométriques, dont la dimension est très petite devant la longueur d'onde.

Les sondes résonantes présentent une meilleure sensibilité sur une gamme de fréquence

étroite. L'ajout d'une charge capacitive, au milieu de la tige pour le dipôle électrique et sur deux points opposés de l'anneau pour le dipôle magnétique, permet d'avoir une réponse invariante sur une large plage de fréquences (voir [74]). Dans le cas d'un dipôle magnétique, l'addition de la charge réduit fortement la sensibilité du champ magnétique alors que la réponse du champ électrique est relativement peu altérée.

Une analyse, réalisée sur un banc de mesure conçu pour l'imagerie électromagnétique en champ proche en micro-ondes, a montré que l'élément clé du dispositif reste l'antenne sensible au champ proche : sa forme, ses dimensions et son orientation définissent la composante du champ capté [81]. Pour l'acquisition du champ électrique, la sonde utilisée est un câble coaxial, dénudé pour faire ressortir l'âme centrale, et dont l'extrémité finale est de $150\ \mu\text{m}$ de diamètre, soit $\lambda/100$ (λ étant la longueur d'onde), venant jouer le rôle de dipôle électrique. Pour la mesure des variations du champ magnétique, la sonde est formée par des enroulements de spires de 3mm de diamètre.

De nombreux travaux rapportent différentes configurations de sondes locales pour la détection du champ magnétique ou électrique. Par exemple Gao et Wolff ont proposé une sonde magnétique constituée d'une boucle de $700\ \mu\text{m}$ de diamètre [82], ainsi qu'un capteur de champ électrique composé d'une antenne dipolaire électrique placée au bout d'un guide d'onde coaxial [83] (voir figure 2.4(a)). Osofsky & al. [84] ont dessiné une sonde magnétique faite d'une double boucle représentée sur la figure 2.4(b).

Un capteur de champ proche électromagnétique, permettant de mesurer simultanément le champ électrique et le champ magnétique, a été présenté initialement par Kanda & al. [85]. La sonde est constituée d'un anneau coupé ; le principe d'acquisition est montré sur le schéma 2.4(c). Récemment, Suzuki & al. [86] ont optimisé cette configuration en utilisant deux antennes rectangulaires segmentées, dont chaque coupure est constituée d'un cristal électro-optique (LiNbO_3). La variation de tension est codée en une variation des propriétés optiques du cristal, lue par un faisceau lumineux, éliminant ainsi les possibles interférences produites par les connexions électriques. Un schéma de la sonde est présenté sur la figure 2.4(d).

2.3.2 Champ proche infrarouge

Dans l'infrarouge, la microscopie champ proche est particulièrement intéressante pour les applications dans le domaine de la caractérisation chimique. Elle concerne des techniques telles que la *microscopie par transformée de Fourier en infrarouge*, le *sondage thermique* et la *dispersion Raman*. Les longueurs d'onde utilisées ici sont encore d'un ordre de grandeur supérieur à celles du domaine visible. Comme dans le cas de la microscopie champ proche en micro-ondes, les techniques champ proche sont très attractives par rapport aux systèmes classiques d'imagerie thermique ; c'est la conséquence directe de la taille de la sonde-distance d'observation par rapport à la longueur d'onde.

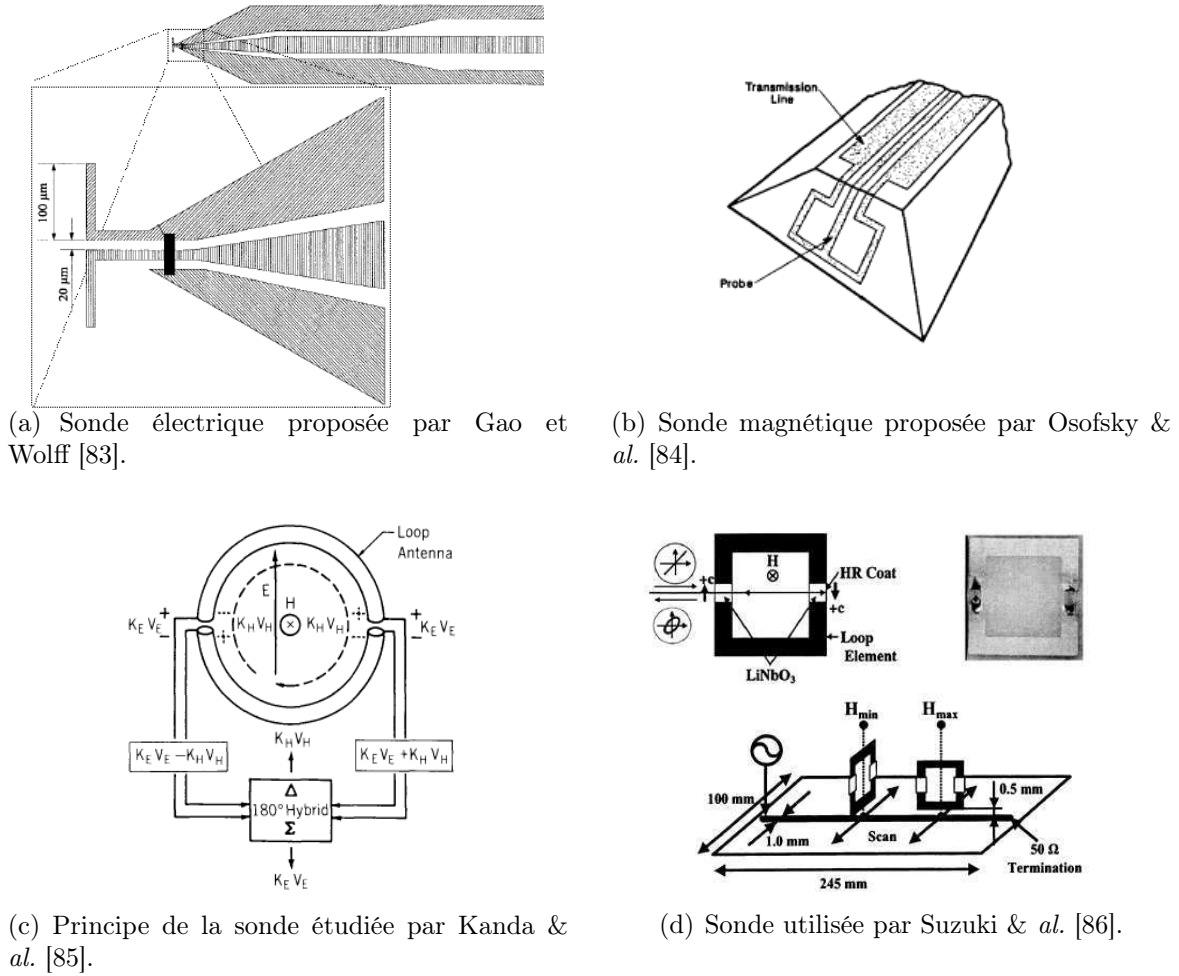


FIG. 2.4 – Quelques sondes destinées à l’inspection champ proche dans le domaine des micro-ondes.

En champ lointain, les antennes sont utilisées avec succès en mode collection, elles sont facilement réalisées par les procédés de lithographie classique [87, 88, 89, 90]. Deux exemples de ces antennes d’usage courant dans les systèmes d’imagerie *IRM* sont présentés sur la figure 2.5(a,b).

En microscopie champ proche, le concept d’antenne pour la fabrication des sondes locales, a été appliqué de façons diverses. Par exemple, en optimisant une sonde coaxiale [91], en ajoutant un dipôle électrique devant la pointe [92, 93], ou en développant une sonde ayant la forme d’une antenne papillon [94].

D’après la théorie de l’électromagnétisme, il est bien connu que les guides d’ondes circulaires et rectangulaires présentent une fréquence de coupure, qui correspond environ au double du diamètre interne. Ainsi, si l’on réduit la dimension latérale d’un guide d’onde jusqu’à une taille beaucoup plus petite que la longueur d’onde, on doit s’attendre à observer des pertes importantes en intensité dues à l’injection, à la diffraction et à l’absorption. Par contre, pour un guide d’onde coaxial, il n’existe pas de fréquence de

coupure, ce qui permet de confiner le signal électromagnétique sans pertes. Keilmann a montré, d'une part qu'en introduisant un fil conducteur effilé au centre d'un guide d'onde, on peut réduire la taille de l'ouverture sans perte de puissance, d'autre part, qu'en laissant dépasser un morceau de fil conducteur de l'extrémité du guide, la puissance transmise varie avec un période de $\lambda/2$. L'ensemble se comporte alors comme une antenne résonante.

Le schéma de la figure 2.5(c) montre la sonde conçue par Mitrofanov & *al.* : un dipôle électrique photoconductif fabriqué en *GaAs* à basse température, est utilisé comme source localisée terahertz. Il est placé à environ 100 μm d'une ouverture de 30 ou 50 μm percée dans une couche métallique. Cette ouverture correspond à une sonde conique réalisée directement à la surface de *GaAs*, améliorant ainsi le couplage dipôle-sonde.

Dans l'étude proposée par Rosner & *al.*, le concept d'antenne papillon est utilisé pour fabriquer une sonde locale, réalisée en métallisant les deux faces opposées d'une pointe pyramidale. Sur la figure 2.5(d), la région sombre représente la moitié de l'antenne, constituée d'une couche de chrome, l'autre moitié étant sur la face cachée opposée de la pyramide.

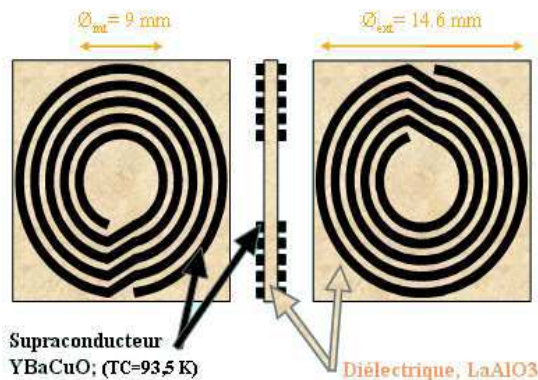
2.3.3 Notion d'antenne dans le domaine du visible

Les ondes optiques associées au domaine du visible appartiennent au vaste domaine des ondes électromagnétiques : de ce fait, la théorie des antennes est totalement valide et transposable dans ce domaine de longueurs d'ondes. Les difficultés portent, d'une part, sur la réalisation des structures dont les dimensions doivent respecter les contraintes par rapport à la longueur d'onde ($\ll \lambda$), et d'autre part, sur les propriétés des matériaux qui ne peuvent plus être considérés comme des conducteurs parfaits dans ce domaine. Néanmoins, le développement de techniques telles que l'usinage *FIB* ou la lithographie E-beam, permettent la fabrication de nano-structures, et l'exploitation des résonances plasmon sur des structures métalliques ; c'est la base du récent développement du concept d'antenne en champ proche optique.

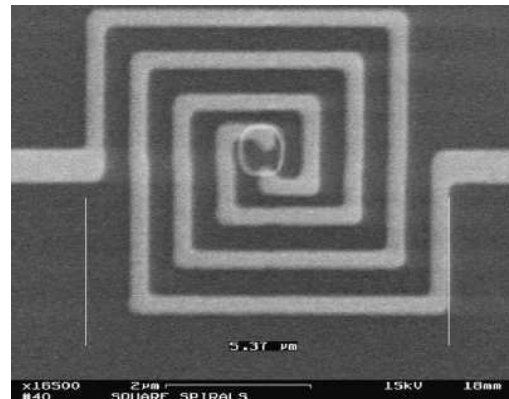
Resonance plasmon

Dans le cas de l'interaction d'une onde optique avec le métal, se sont les électrons de conduction qui vont jouer un rôle très important. Les électrons libres du métal peuvent être traités comme un plasma d'électrons à haute densité, et l'excitation collective du gaz d'électrons peut s'accompagner d'un mouvement cohérent dans le métal, appelé "*plasmon*". Dans le cas plus général, le terme plasmon décrit une oscillation collective longitudinale des électrons. En fonction des conditions limites imposées par le plasma d'électron, on peut distinguer différents modes d'oscillation plasmon :

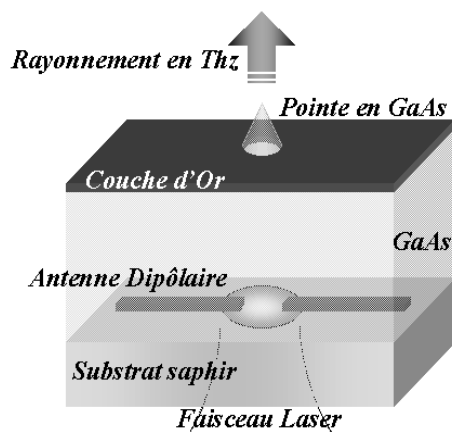
- plasmon de volume



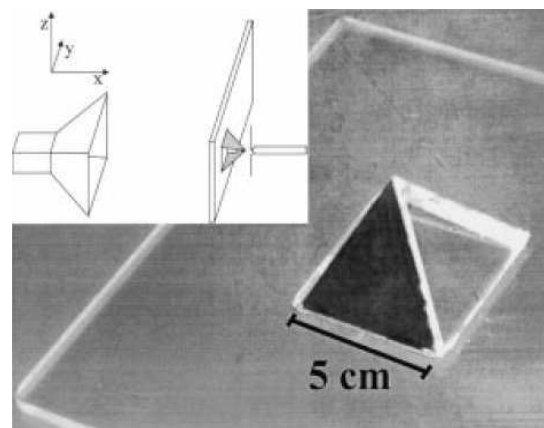
(a) Antenne de surface supraconductrice auto-résonante à 64 MHz , d'après [89]. ϕ_{int} et ϕ_{ext} sont respectivement 9 et 14,6 mm



(b) Antenne en spirale carrée de $5,37 \mu\text{m}$ de côté, d'après [90].



(c) Schéma de la sonde locale proposée par Mitrofanov & al. [92, 93].



(d) Modèle de sonde proposé par Rosner & al. [94].

FIG. 2.5 – Exemples d'antennes et de sondes champ proche dans le domaine de l'infrarouge.

- plasmon de surface
- plasmon de particules.

Généralement, les métaux nobles tels que l'or et l'argent sont utilisés pour la valeur négative de leur indice de réfraction dans le visible. Une vision plus approfondie de ce phénomène est donnée par l'étude théorique réalisée par Baida & al. [95] et dans la dissertation de Lamprecht [96].

L'implication du phénomène de résonance plasmon en optique peut être abordée à partir des effets observés sur des nano-particules métalliques. Des études ont montré que ces nano-particules génèrent des modes électromagnétiques connus comme "*modes de plasmon de surface*", avec une réponse spectrale dans le domaine du visible qui dépend de la forme géométrique et de la dimension de la particule [97, 98]. Kottmann & al. décrivent

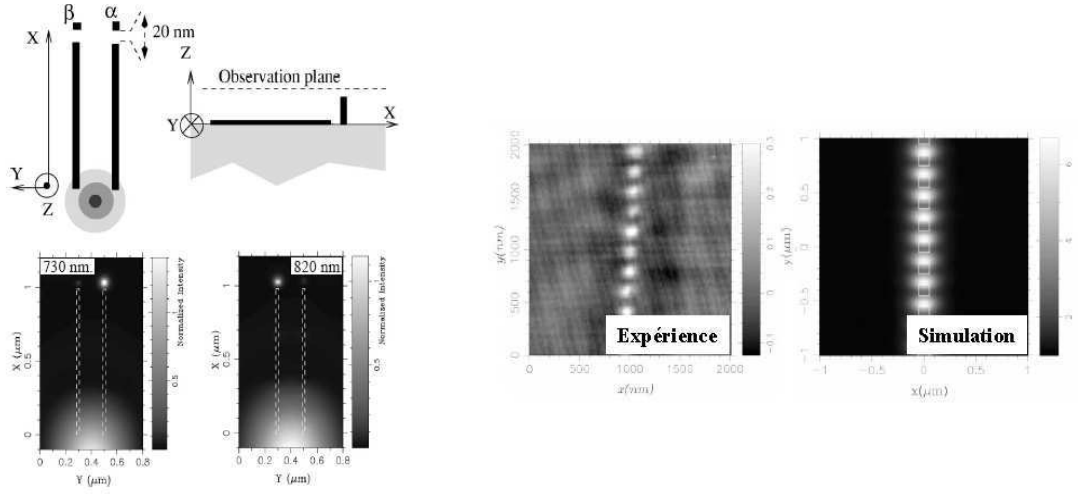
un comportement plus complexe pour des particules ayant de fortes discontinuités, autres que des particules sphériques [99]. De plus, il a été montré que la réponse de ces particules est sensible à la polarisation du champ incident [100].

Ces particules présentent une forte exaltation du champ électromagnétique localisée au niveau des interfaces. Cette propriété peut être employée en microscopie champ proche optique, soit pour développer des sondes [65] ou des écrans métalliques à ouverture [50, 51, 52, 101], soit pour générer des sources ponctuelles. Martin & *al.* [65] ont réalisé des études (théoriques) sur des structures elliptiques et sphériques. Leurs résultats montrent qu'il est possible en ajoutant une telle structure à l'extrémité d'une pointe diélectrique, d'obtenir une meilleure exaltation du champ électrique, pour une longueur d'onde définie par les dimensions de la structure ajoutée. Ceci a été confirmé expérimentalement par Sqalli & *al.* [102, 66] qui ont mis au point une technique de greffage d'une sphère d'or au bout d'une pointe diélectrique.

L'excitation plasmon peut se propager sur une interface diélectrique-métal, conduisant au développement de guides d'onde de plasmon de surface. Ces guides d'onde peuvent être réalisés à partir d'un ruban métallique déposé sur un substrat diélectrique [103], permettant de propager l'excitation locale sur des distances plus grandes que la longueur d'onde utilisée. L'efficacité de ce guidage a été utilisée pour exciter une nano-particule carrée placée à l'extrémité d'un guide [104], (voir figure 2.6(a)).

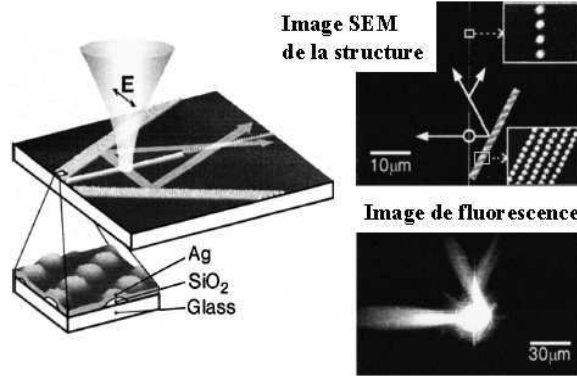
De plus, on peut employer le transfert d'énergie électromagnétique entre les nano-particules dans une chaîne, quand la distance entre elles est de l'ordre de la longueur d'onde incidente [105, 106]. La distribution du champ proche optique est déterminé, à la fois, par le mode plasmon lié à chaque particule et par le couplage existant entre elles. La figure 2.6(b) montre des résultats théoriques et expérimentaux, pour une chaîne de nano-particules d'or utilisée comme guide d'onde, obtenu par Krenn & *al.*

Enfin, dans une structure périodique composée de nano-particules métalliques, les propriétés d'oscillation plasmon et le couplage existant entre elles, peuvent être exploités pour contrôler et manipuler le plasmon de surface qui se propage à l'interface métal/diélectrique [107]. Ceci conduit à la conception de dispositifs planaires optiques fortement intégrés, qui à la différence des systèmes optiques conventionnels, contournent la limite de diffraction classique. Il s'agit d'un domaine d'études en pleine expansion qui par opposition à l'optique classique, porte le nom d'optique plasmonique. Par exemple, on peut citer la fabrication d'une structure semi-réfléchissante constituée par une ligne de nano-particules [108], et l'application du réseau de Bragg pour la génération d'un miroir de Bragg [109] ou d'un réflecteur elliptique de Bragg [110]. La figure 2.6(c) montre un dispositif, contenant une structure semi-réfléchissante et un réflecteur, conçu par Krenn & *al.*, permettant de réaliser un adressage du faisceau lumineux.



(a) Exemple de deux rubans métalliques utilisés comme guide d'ondes pour exalter deux particules carrées, $\beta = 20 \times 30 \text{ nm}^2$ $\alpha = 30 \times 30 \text{ nm}^2$. Extrait des travaux présentés par Weeber & *al.* [104].

(b) Résultats obtenus par Krenn & *al.* pour une chaîne de nano-particules d'or utilisée comme guide d'onde [105, 106].



(c) Exemple d'un dispositif planaire optique, composé d'un réflecteur de Bragg et d'une structure semi-réfléchissante, publié par Krenn & *al.* [107].

FIG. 2.6 – Exemples d'exploitation du phénomène de résonance plasmon de surface.

Quelques exemples d'antennes dans le visible

La première structure envisagée est celle de l'antenne papillon, largement étudiée dans le domaine des micro-ondes. Le modèle classique est constitué de deux triangles isocèles métalliques, face à face et séparés par un espace très petit devant la longueur d'onde. Le caractère vectoriel de cette antenne est imposé par l'existence d'un dipôle électrique orienté le long du bras de l'antenne. Ce comportement est confirmé par Sendur & *al.* [111] qui ont réalisé des simulations (méthode *FDTD* et modèle analytique) à partir d'une ouverture type papillon dans un écran d'or. Oesterschulze & *al.* [112] ont utilisé une pointe pyramidale, où deux côtes opposés sont métallisés, pour leurs études théoriques.

Plus récemment, Fromm & *al.* [113, 114] ont fabriqué des antennes papillon planaires en or sur un substrat transparent, par lithographie e-beam, et ont étudié expérimentalement le comportement spectral de ce type d'antenne en fonction de l'espace entre les deux triangles et de la polarisation du faisceau incident.

Mühlschlegel & *al.* [115] ont rapporté une version optique d'une antenne demi-longueur d'onde (figure 2.2(c)) destinée à résonner dans le domaine optique, présentant une sensibilité à la polarisation et une forte exaltation au centre de l'antenne. A la différence du domaine micro-ondes, la longueur des tiges est considérablement plus petite que la demi-longueur d'onde ; cette différence est liée au comportement non idéal des métaux dans le domaine du visible.

En microscopie à sonde locale, le concept d'antenne a été développé en ajoutant une nano-particule d'or à l'extrémité d'une pointe. Elle joue le rôle d'un dipôle électrique, donnant une meilleure réponse pour le champ électrique. En s'appuyant sur les travaux réalisés par Devaux & *al.* [63, 64], on peut s'apercevoir qu'avec une sonde métallisée à ouverture, sous certaines conditions d'éclairage, il est possible de privilégier la détection du champ magnétique. Ce résultat a été expliqué à partir de la théorie des modes plasmon sur des cylindres métalliques infinis (2D) [116, 117, 62], en considérant que seule l'extrémité de la pointe pouvait interagir avec la structure. Suivant cette approximation, on retrouve le cas d'un petit cylindre homogène, ou anneau, correspondant à la définition du dipôle magnétique.

2.4 Conclusion

Ce chapitre nous a permis de développer la notion d'antenne dans différents domaines des ondes électromagnétiques et de montrer les possibilités de l'étendre au domaine des ondes visibles. Les difficultés principales de l'application de ce concept en optique champ proche viennent essentiellement des propriétés des matériaux et du changement d'échelle de longueur d'onde, qui impose la taille nanométrique des dispositifs possibles. Malgré ces difficultés des travaux récents en optique champ proche ont déjà montré des développements possibles, non seulement en optique micro-ondes et infrarouge, mais également dans le domaine visible, grâce en particulier à l'observation des phénomènes plasmon dans des structures métalliques.

A partir des travaux déjà réalisés, on peut prédire que les structures fermées telles qu'un anneau ou un rectangle, sous certaines conditions d'illumination et de polarisation, sont capables de privilégier le champ magnétique. De même, certaines structures reprenant une géométrie proche de celle du dipôle électrique sont plus aptes à exalter le champ électrique. Nous proposons l'emploi d'une structure annulaire comme nano-collecteur ou nano-émetteur, afin de concevoir des dispositifs fonctionnalisés capables de privilégier une composante spécifique du champ électromagnétique.

Ainsi dans la suite de ce travail, nous proposons d'étudier de manière théorique le comportement en champ proche d'une structure annulaire simple élémentaire, *l'anneau*, en fonction des conditions d'illumination. Les résultats numériques de simulation et le développement de procédés spécifiques de fabrication conduiront alors à la réalisation de dispositifs optimisés.

Chapitre 3

Etude numérique d'un anneau métallique

3.1 Introduction

Les chapitres précédents ont permis d'établir un lien entre les propriétés d'une sonde locale, utilisée en microscopie champ proche, et celles d'une antenne électromagnétique. Il s'agit en particulier de tirer profit des développements des antennes des radio-micro ondes pour chercher à optimiser les possibilités des sondes optiques afin essentiellement de préserver le caractère vectoriel du champ électromagnétique, en mode collection ou émission.

Dans un premier temps, nous proposons d'étudier une antenne simple, constituée d'une structure annulaire métallique qui, grâce à sa géométrie particulière en forme de boucle, doit jouer un rôle spécifique en présence du champ magnétique. Nous aborderons l'étude numérique et analytique de cette antenne élémentaire magnétique (*nano-anneau*) en champ proche, et principalement celle de son comportement spectral. Nous chercherons également à développer ses capacités, en adaptant la polarisation et en proposant différentes variantes dans sa géométrie.

En électromagnétisme, comme dans d'autres domaines de la physique, le développement de modèles et l'analyse numérique constituent un outil puissant d'étude et de simulation. Actuellement, plusieurs méthodes théoriques permettent d'étudier le champ électromagnétique en présence de structures capables de modifier sa propagation. Nous pouvons citer entre autres, les techniques perturbatives [118], intégrales [119], différentielles [120], la méthode multiple-multipole [49], et celles des modes couplés [62], des éléments finis [121], et des différences finies spatio-temporelles (*FDTD*) [122]. Cette dernière méthode est une des plus intéressantes pour l'objectif proposé, en particulier pour sa facilité à traiter les problèmes en trois dimensions (3D). Enfin, l'étude de l'anneau

sera comparée à celle du cylindre métallique infini (cas 2D), pour lequel on connaît les solutions analytiques, en développant la méthode des modes couplés.

Le code de calcul FDTD utilisé dans ce travail est commercial ¹, et les résultats de simulation ont été obtenus pour un anneau d'or de taille nanométrique, éclairé par un champ lumineux dans différentes conditions de polarisation. Nous avons ainsi été amené à résoudre les problèmes rencontrés au cours de la mise en place de la modélisation, tels que la prise en compte de la dispersion des matériaux, la définition des conditions de non réflexion des ondes sur les bords de la fenêtre de calcul, et l'optimisation de l'échantillonnage spatial tenant compte de nos possibilités matérielles, plus en espace mémoire qu'en temps de calcul. De plus, les conditions de calcul ont été modifiées au fur et à mesure de l'évolution du code commercial.

3.2 La méthode de calcul *FDTD*

La méthode *FDTD* résout les équations de Maxwell considérées comme un système d'équations aux différences finies dans l'espace et le temps. La technique consiste à diviser le domaine d'étude en un ensemble de petites cellules cubiques carrées, caractérisées par leurs propriétés électromagnétiques locales et par les couples des vecteurs \mathbf{E} et \mathbf{H} .

Les équations de Maxwell, dans un milieu isotrope, prennent la forme suivante ² :

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\mu \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t}$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J} + \varepsilon \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t}$$

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = \frac{\rho}{\varepsilon}$$

$$\nabla \cdot \mathbf{H} = 0.$$

Dans notre cas, nous considérons des milieux non magnétiques sans charges ni courants libres ; les équations de Maxwell deviennent alors :

¹FullWave de RSoft

²Afin de ne pas alourdir notre texte, nous ne précisons pas dans la suite la signification de toutes les variables et de tous les paramètres qui entrent dans la description complète de la théorie de propagation des champs électromagnétiques. Sauf exceptions nécessaires, les définitions sont celles habituellement rencontrées dans les ouvrages précédemment cités.

$$\frac{\partial H_x}{\partial t} = -\frac{1}{\mu} \left[\frac{\partial E_y}{\partial z} - \frac{\partial E_z}{\partial y} \right] \quad (3.1)$$

$$\frac{\partial E_y}{\partial t} = -\frac{1}{\varepsilon} \left[\frac{\partial H_x}{\partial z} - \frac{\partial H_z}{\partial x} \right], \quad (3.2)$$

pour les composantes H_x et E_y reproduites ici. Pour obtenir les relations pour les autres composantes du champ, il suffit d'effectuer une permutation circulaire sur les variables x, y, z . Les équations de Maxwell décrivent une situation où les variations temporelles du champ électrique \mathbf{E} sont dépendantes des variations spatiales du champ magnétique \mathbf{H} , et vice versa. La méthode *FDTD* établit les équations aux différences partielles dans le temps et dans l'espace en les approximant à des différences finies calculées aux points de maillage.

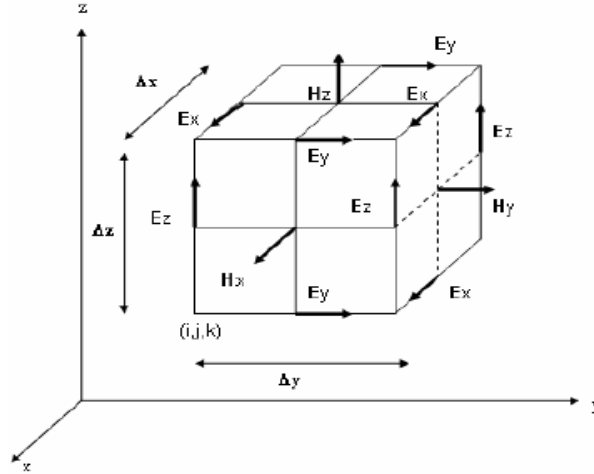


FIG. 3.1 – Maillage de l'espace proposé par Yee [123]. Le champ \mathbf{H} est calculé sur un maillage décalé d'une demi-maille par rapport au maillage utilisé pour le calcul du champ \mathbf{E} .

Communément, on utilise le maillage spatial proposé par Yee [123], et les champs \mathbf{E} et \mathbf{H} sont calculés sur les points de cette grille. Les composantes du champ électrique et magnétique sont décalées sur les trois dimensions comme on peut le voir sur la figure 3.1. Le temps est discrétisé en pas Δt ; le champ électrique est calculé aux instants $t = n.\Delta t$ et le champ magnétique est calculé à $t = (n + 1/2).\Delta t$, n étant un nombre entier qui représente les instants de calcul. Ce qui veut dire que le champ \mathbf{E} , à un instant $t = n.\Delta t$, est égal au champ \mathbf{E} à l'instant $t = (n - 1).\Delta t$, plus un terme additionnel calculé à partir de l'accroissement ou gradient du champ \mathbf{H} calculé à l'instant $t = (n - 1/2).\Delta t$. La méthode fournit six équations pour calculer le champ en tout point de la maille, défini par des nombres entiers i, j, k . Ceci permet de ré-écrire les équations 3.1 :

$$\begin{aligned}
\mathbf{H}_{x(i,j,k)}^{n+1/2} &= \mathbf{H}_{x(i,j,k)}^{n-1/2} + \frac{\Delta t}{\mu \Delta z} (\mathbf{E}_{y(i,j,k)}^n - \mathbf{E}_{y(i,j,k-1)}^n) - \frac{\Delta t}{\mu \Delta y} (\mathbf{E}_{z(i,j,k)}^n - \mathbf{E}_{z(i,j-1,k)}^n) \\
\mathbf{E}_{x(i,j,k)}^{n+1} &= \mathbf{E}_{x(i,j,k)}^n + \frac{\Delta t}{\varepsilon \Delta y} (\mathbf{H}_{z(i,j+1,k)}^{n+1/2} - \mathbf{H}_{z(i,j,k)}^{n+1/2}) - \frac{\Delta t}{\varepsilon \Delta z} (\mathbf{H}_{y(i,j,k+1)}^{n+1/2} - \mathbf{H}_{y(i,j,k)}^{n+1/2}) .
\end{aligned}$$

Ces équations sont résolues itérativement, en alternant le calcul des composantes du champ \mathbf{E} et les composantes du champ \mathbf{H} , à intervalle $\Delta t/2$. Notons que le logiciel commercial utilise les unités de Gauss, et les champs sont exprimés avec la même unité et $\varepsilon_0 = \mu_0 = c = 1$.

3.2.1 Conditions initiales de calcul

Ces conditions peuvent être séparées en deux types, des paramètres physiques et des paramètres numériques.

Paramètres physiques

Pour définir l'interaction entre le champ électromagnétique et une structure donnée, deux groupes de paramètres physiques sont nécessaires initialement :

- *Les propriétés physiques de la structure*, à savoir la constante diélectrique relative $\varepsilon(\mathbf{r}, \omega)$ et la constante magnétique relative $\mu(\mathbf{r}, \omega)$, ainsi que les dimensions géométriques de tous les éléments de la structure à analyser.
- *Le champ d'excitation électromagnétique initial*, qui précise les variations spatiales et temporelles du champ exciteur (faisceau d'éclairage).

Paramètres du matériau Le logiciel utilise les équations suivantes pour définir les paramètres d'un matériau :

$$\begin{aligned}
\mathbf{D} &= \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \\
\mathbf{B} &= \mu_0 \mathbf{H} + \mathbf{M}
\end{aligned}$$

avec

$$\begin{aligned}\mathbf{P} &= \varepsilon_0 \left[\chi(\omega) \mathbf{E} + \chi_2 \mathbf{E}^2 + \chi_3(\omega) \frac{I}{1 + c_{sat} I} \mathbf{E}^3 \right] \\ \mathbf{M} &= \varepsilon_0 \left[\chi_m(\omega) \mathbf{H} + \chi_{2m} \mathbf{H}^2 + \chi_{3m}(\omega) \frac{I}{1 + d_{sat} I} \mathbf{H}^3 \right].\end{aligned}$$

Chaque équation présente trois termes, chacun correspondant à un effet physique spécifique :

- le premier terme rend compte de la dispersion du matériau,
- les deuxièmes et troisièmes termes sont relatifs à des effets non-linéaires d'ordre deux et trois qui correspondent à des mélanges possibles de fréquences (pour les études des effets liés à la génération de second harmonique et de l'effet Kerr).

Dans notre cas, comme nous l'avons déjà souligné, les matériaux sont non magnétiques, et la constante magnétique est égale à la constante magnétique dans le vide ($\mu_0 = 4\pi 10^{-7}$ *MKS* ou $\mu_0 = 1$ *CGS*).

Les deux matériaux envisagés par la suite sont le verre *ITO* et l'or. Le verre *ITO* est un matériau diélectrique linéaire, sans dispersion, de constante diélectrique $\varepsilon(\omega) = \varepsilon_0 \varepsilon_r$, où $\varepsilon_r = 2.16$ est strictement réelle et ε_0 est la constante diélectrique dans le vide ($\varepsilon_0 = (1/(4\pi))10^{-9}$ *MKS* ou $\varepsilon_0 = 1$ *CGS*). Par contre, dans le cas de l'or, qui est un métal noble, la constante diélectrique présente une partie réelle et une partie imaginaire qui varient avec la longueur d'onde.

Relation de dispersion Il est donc nécessaire de définir la fonction de dispersion pour l'or en recherchant une expression analytique pour la constante diélectrique $\varepsilon = f(\omega)$, en accord avec des valeurs expérimentales connues sur un domaine de fréquence donné. Une relation générale est proposée, basée sur les coefficients de Sellemeier ; elle s'exprime comme une superposition linéaire de termes de résonance :

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty + \sum_k \varepsilon_k(\omega), \quad (3.3)$$

où ε_∞ est la valeur limite quand la fréquence tend vers l'infini et $\varepsilon_k(\omega)$ la valeur à la résonance. Chaque terme de résonance est défini suivant l'équation suivante :

$$\varepsilon_k(\omega) = \frac{\delta_k}{-a_k \omega^2 - j b_k \omega + c_k}. \quad (3.4)$$

Nous pouvons préciser les liens entre cette forme et les différents modèles de dispersion qui sont habituellement proposés pour décrire la relation de dispersion pour les métaux.

– *modèle de Drude*

$$\varepsilon_r(w) = \varepsilon_\infty + \frac{\omega_p^2}{2i\omega\nu_c - \omega^2}, \quad (3.5)$$

où ω_p est la fréquence plasmon du matériau et ν_c représente la fréquence de collision.

– *modèle de Lorentz*

$$\varepsilon_r(w) = \varepsilon_\infty + \frac{(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty)\omega_0^2}{\omega_0^2 + 2i\omega\nu_c - \omega^2}, \quad (3.6)$$

où $\varepsilon_s - \varepsilon_\infty$ est la force du résonateur, ν_c est le facteur d'atténuation et ω_0 est la fréquence de résonance.

– *modèle de Debye*

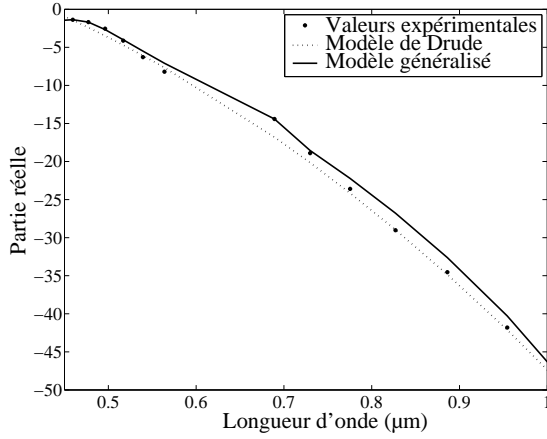
$$\varepsilon_r(w) = \varepsilon_\infty + \frac{S_k}{1 + i\omega t_0}, \quad (3.7)$$

où S_k est la force du résonateur, t_0 le temps de relaxation de Debye.

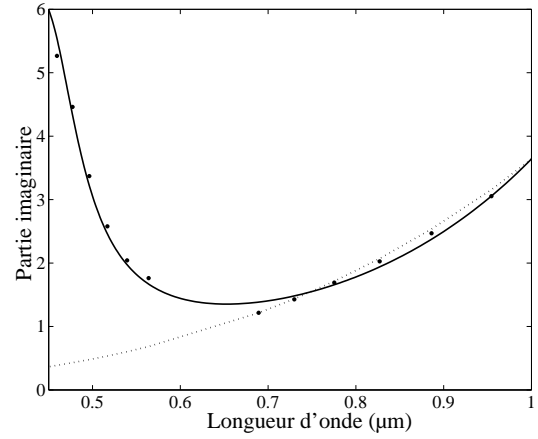
Les modèles mentionnés ci-dessus peuvent être retrouvés en choisissant convenablement les coefficients de Sellemeier (a_k , b_k et c_k de l'équation-3.4) de la manière suivante :

$$\begin{aligned} \text{pour Drude :} \quad & a_1 = 1, \quad b_1 \neq 0, \quad a_{k \neq 1} = b_{k \neq 1} = c_i = 0 \\ \text{pour Lorentz :} \quad & a_1 = 1, \quad b_1 \neq 0, \quad c_1 \neq 0, \quad a_{k \neq 1} = b_{k \neq 1} = c_{k \neq 1} = 0 \\ \text{pour Debye :} \quad & a_i = 0, \quad b_1 \neq 0, \quad c_1 = 1, \quad a_{k \neq 1} = b_{k \neq 1} = c_{k \neq 1} = 0. \end{aligned}$$

Le logiciel offre la possibilité de définir quatre termes de résonance pour adapter la relation de dispersion. A partir des valeurs réelles et imaginaires de l'indice de réfraction de l'or pour différentes longueurs d'onde, disponibles dans l'ouvrage de Palik [124], les coefficients de Sellemeier ont été estimés sur une gamme de longueurs d'onde de 450 à 850 nm. La figure 3.2 présente les courbes de dispersion pour les parties réelles et imaginaires de la constante diélectrique. Elles permettent de comparer l'ajustement optimal obtenu pour le modèle de Drude et pour le modèle à quatre termes de résonance. On peut facilement voir que le modèle de Drude, ne permet pas de décrire de manière satisfaisante la dispersion de la partie imaginaire en dessous d'une longueur d'onde d'environ 650 nm. Ce défaut est considérablement réduit en utilisant le modèle généralisé, basé sur les coefficients de Sellemeier. Le procédé d'ajustement est basé sur la méthode de Newton ; l'erreur maximale est de 13 %, pour les parties réelles et imaginaires, et l'erreur moyenne sur l'ensemble des points est de 4 %, pour la partie réelle et de 1 % pour la partie imaginaire.



(a) Partie réelle de la constante diélectrique.



(b) Partie imaginaire de la constante diélectrique.

FIG. 3.2 – Courbes de dispersion de la constante diélectrique de l'or.

Champ d'excitation électromagnétique Dans la phase d'initialisation du calcul, il est nécessaire de définir au temps $t = 0$, l'amplitude vectorielle du champ électrique \mathbf{e} dans un plan d'injection perpendiculaire à l'axe de propagation ($z = z_i$), ainsi que la dépendance temporelle. Ces conditions fixent la polarisation et le comportement spectral du champ initial injecté. Par séparation des effets spatiaux et temporels, le champ exciteur s'écrit :

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = \mathbf{e}(\mathbf{r}) g(t), \quad (3.8)$$

où \mathbf{r} est le vecteur position d'un point du plan d'injection, le vecteur \mathbf{e} définit le comportement spatial et $g(t)$ la dépendance temporelle.

Dépendance temporelle : Nous pouvons choisir la dépendance temporelle $g(t)$ du champ d'excitation (équation-3.8) comme une fonction sinusoïdale limitée par une enveloppe $\xi(t)$:

$$g(t) = \xi(t) \sin(\omega t), \quad (3.9)$$

où ω est la pulsation de l'excitation. Suivant la fonction enveloppe ξ , on peut définir deux sortes d'excitation :

- *régime continu*, lorsqu'on étudie le comportement du champ en régime permanent à une fréquence donnée. La fonction enveloppe $\xi(t)$ est définie par :

$$\xi(t) = \begin{cases} \sin\left[\frac{\pi}{2} \frac{t}{t_r}\right] & 0 \leq t < t_r \\ 1 & t \geq t_r \end{cases} \quad (3.10)$$

où $\geq t_r$ représente le temps nécessaire à l'établissement du régime continu.

- *régime pulsé*, pour lequel la fonction enveloppe $\xi(t)$ peut être définie par une fonction gaussienne

$$\xi(t) = \exp \left[- \left(\frac{t - t_d}{\tau} \right)^2 \right] \quad (3.11)$$

de durée temporelle τ (qui fixe la largeur de la plage de fréquence) et de retard d'injection t_d de l'excitation.

Les deux modes d'injection utilisés pour une longueur d'onde $\lambda = 594 \text{ nm}$ ($\lambda = 2\pi c/\omega$ où c est la vitesse de la lumière dans le vide) sont illustrés sur la figure 3.3.

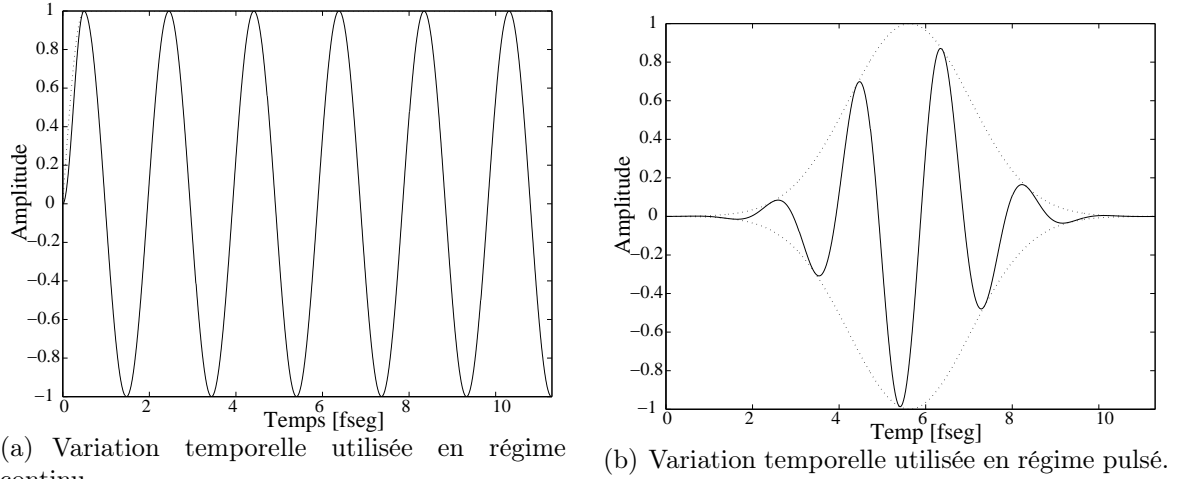


FIG. 3.3 – Types de régimes temporels utilisés pour la simulation pour $\lambda = 594 \text{ nm}$. En continu, la variation temporelle globale, et en pointillé, la fonction d'enveloppe.

Dépendance spatiale : le comportement spatial Ψ dépend fortement de la polarisation. En prenant en compte la géométrie particulière de l'objet, quatre polarisations sont considérées dans la suite : linéaire, circulaire, radiale et azimutale.

La polarisation est fixée par la distribution d'amplitude des composantes transversales du champ électrique. Nous remarquons ici, que la phase du vecteur $\mathbf{e}(x, y, z_p)$ est définie constante dans le plan d'injection ($z = z_i$). Le logiciel permet en plus de définir deux injections pouvant être déphasées, cette facilité sera utile pour définir différents modes de polarisation.

- *polarisation linéaire* : dans ce cas, le champ électrique est polarisé linéairement suivant la direction x . Afin de limiter les effets parasites sur les bords du volume de calcul, nous avons opté pour un faisceau de profil d'amplitude gaussien représenté

sur la figure 3.4.

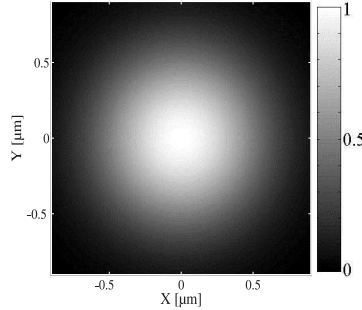


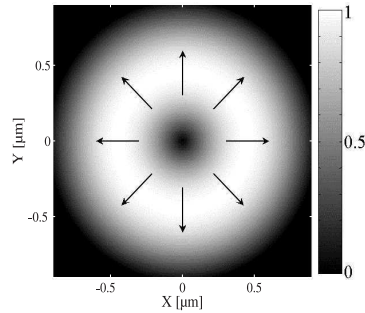
FIG. 3.4 – Distribution gaussienne d'amplitude du champ électrique pour les polarisations linéaire et circulaire."

- *polarisation circulaire* : cette polarisation est définie par deux champs, un premier polarisé linéairement suivant la direction x , et un deuxième polarisé linéairement suivant la direction y , avec un déphasage de 90° entre les deux. Pour cette polarisation une distribution d'amplitude gaussienne est également employée pour les mêmes raisons que précédemment (voir figure 3.4).
- *polarisation radiale* : dans ce cas, pour tout point dans un plan perpendiculaire à l'axe de propagation, le champ électrique vibre suivant un rayon passant le point de l'axe optique, pris comme origine ; cette polarisation est intéressante car elle présente une symétrie axiale. Une description analytique du champ électrique et magnétique a été réalisée par T. Grosjean & *al.* [125]. La figure 3.5 montre les distributions d'amplitude de $(|\mathbf{e}(x, y, z_i)|)$ et les composantes e_x , e_y correspondantes du champ électrique.
- *polarisation azimutale* : ses caractéristiques sont identiques à celles de la polarisation radiale, mais ici c'est le champ magnétique qui vibre radialement ; elle présente également la symétrie axiale. La figure 3.6 montre les distributions d'amplitude de $(|\mathbf{e}(x, y, z_i)|)$ et des composantes e_x , e_y correspondantes.

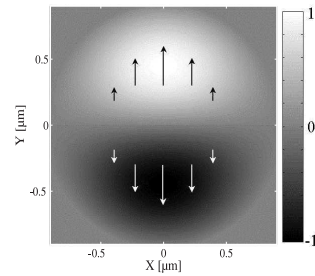
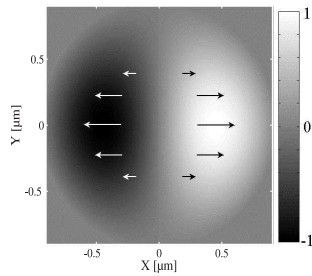
Conditions numériques de calcul

Comme indiqué précédemment, l'algorithme *FDTD* détermine les variations temporelles des composantes du champ électrique et du champ magnétique, s'appuyant sur un double échantillonnage spatial et temporel. En conséquence, il faut définir des paramètres tels que : l'espace de calcul, les pas d'échantillonnage de l'espace et du temps, ainsi que le temps total de propagation.

- L'espace de calcul est celui qui contient la structure, et dans lequel s'appliquent les équations de Maxwell. Il est nécessaire de définir stratégiquement les conditions de

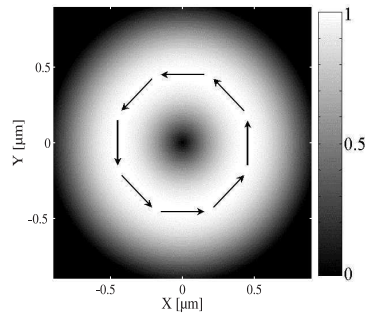


(a) Distribution de l'amplitude ($|\mathbf{e}(x, y, z_i)|$) du champ électrique.

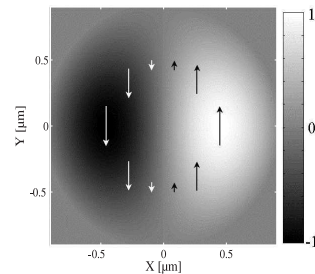
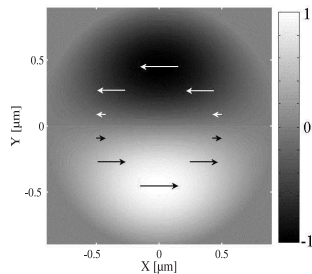


(b) Distribution de l'amplitude de la composante e_x . (c) Distribution de l'amplitude de la composante e_y .

FIG. 3.5 – Distributions d'amplitude du champ électrique en polarisation radiale. Les flèches donnent la direction de vibration du champ électrique.



(a) Distribution de l'amplitude ($|\mathbf{e}(x, y, z_i)|$) du champ électrique.



(b) Distribution de l'amplitude de la composante e_x . (c) Distribution de l'amplitude de la composante e_y .

FIG. 3.6 – Distributions d'amplitude du champ électrique en polarisation azimuthale. Les flèches donnent la direction de vibration du champ électrique.

validité, sachant que les limitations de l'espace ne sont imposées que par les moyens de calcul, sous couvert de la stabilité et de la convergence des résultats. La technique la plus efficace pour le traitement du champ aux frontières est la "*Perfectly Matched Layer*" (*PML*) [126], pour laquelle une couche d'un matériau "hypothétique" ayant une conductivité électrique et magnétique données est ajoutée tout autour de l'espace de calcul, de façon à ce que l'impédance du champ reste constante, absorbant ainsi l'énergie sans introduire de réflexions parasites. Dans le logiciel que nous utilisons, la partie évanescence du champ qui arrive sur les bords de la fenêtre de calcul, n'est pas prise en compte, ce qui représente une limitation du code. On peut signaler cependant, que des algorithmes d'implémentation de la *PML* tenant compte des ondes évanescences ont été développés avec succès [127].

- Le temps total de propagation va être ajusté selon le type d'étude désirée. D'une part, si l'on est intéressé par une étude en régime permanent (l'équation-3.9 ne comporte plus de dépendance temporelle), le temps total de propagation doit être suffisamment long garantissant la stabilisation du champ électromagnétique et donc de la propagation. D'autre part, si l'on est intéressé par une analyse spectrale ($\xi(t)$ fixe la durée du champ initial dans l'équation-3.9), le temps de calcul doit être choisi de sorte que le champ électromagnétique exciteur se propage dans tout le domaine de calcul.
- Comme indiqué précédemment, le champ électrique est calculé en fonction de la variation spatiale du champ magnétique et vice versa, et le pas d'échantillonnage spatial doit être assez petit pour fournir une expression fine du champ et décrire correctement la géométrie de la structure. Il est déterminé par rapport à la longueur d'onde dans le(s) matériau(x) (et non dans l'air), et choisi généralement inférieur à $\lambda/20$. Le code de calcul utilisé réalise un maillage uniforme, mais on peut noter qu'il existe des algorithmes *FDTD* qui utilisent un maillage non-uniforme ou adaptatif, permettant d'optimiser le pas d'échantillonnage en fonction des matériaux et des détails des objets, entraînant ainsi un gain de temps et d'espace de calcul.
- Comme les composantes du champ électromagnétique sont par définition spatio-temporelles, le pas d'échantillonnage temporel est lié au pas d'échantillonnage spatial. Pour qu'un tel algorithme converge (consistant et stable), la condition suivante doit être respectée :

$$c\Delta t < \frac{1}{\sqrt{\frac{1}{\Delta x^2} + \frac{1}{\Delta y^2} + \frac{1}{\Delta z^2}}}, \quad (3.12)$$

dans laquelle c est la vitesse de la lumière.

3.2.2 Définition de l'espace de simulation et des paramètres de calcul

Le code de calcul ne prenant pas en compte la dispersion dans le cas de structures à symétrie radiale 2.5D, toutes les simulations sont réalisées dans l'espace 3D, nécessitant des moyens et des durées de calculs plus importants. Cette contrainte offre en contrepartie la possibilité d'analyser le comportement de structures complexes, et en particulier de traiter le cas de l'anneau en présence de modifications simples de sa géométrie, par exemple des coupures suivant un diamètre.

D'une part, comme nous le présenterons dans le chapitre dédié à la fabrication, nous avons la possibilité de réaliser des anneaux de quelques centaines de nanomètres de rayon externe ; nous avons alors fixé les dimensions de l'anneau à : $R_{\text{externe}} = 500 \text{ nm}$, $R_{\text{interne}} = 200 \text{ nm}$, et $\text{Hauteur} = 105 \text{ nm}$.

D'autre part, l'algorithme utilisé pour la *PLM* ne tenant pas compte du champ évanescent, un espace de propagation libre entre les bords de l'anneau et les frontières du volume de calcul, de 420 nm dans toutes les directions, a été ajouté au volume propre de la structure. Ceci permet de diminuer les effets qui pourraient être produits par réflexion des ondes évanescentes sur les bords de la fenêtre de calcul au voisinage de la structure ; leur intensité résiduelle a été estimée à 10^{-6} de celle du champ total. Les dimensions finales du volume total de calcul ont été fixées à $1840 \text{ nm} \times 1840 \text{ nm} \times 945 \text{ nm}$.

Enfin, nous devons positionner le plan d'injection et choisir un plan d'analyse. Le premier est fixé suivant les conditions de simulation ; le second précise la position du plan de mesure et de sauvegarde des composantes du champ électromagnétique. Finalement, une représentation graphique des conditions retenues pour la simulation, est montrée sur la figure 3.7.

Les paramètres associés au champ d'excitation n'imposent pas de contraintes sur la définition de l'espace de calcul, ils seront déterminés en fonction des conditions de simulation, par exemple, mode du faisceau d'éclairage, polarisation, distribution spatiale d'intensité, durée.

Détermination des pas d'échantillonnage spatial et temporel

La simulation 3D nécessitant un espace mémoire important, les conditions optimales seront adaptées à nos possibilités. Après plusieurs essais préliminaires, les dimensions du volume de calcul sont déterminées sur la base d'un compromis entre l'espace mémoire disponible et les pas d'échantillonnage, spatial et temporel. Ils doivent en particulier éviter des effets néfastes dus à un maillage spatial grossier de la structure (et donc des champs), et respecter les conditions de convergence des calculs. Ces conditions ont été en plus modifiées compte tenu des améliorations du logiciel (mise à jour) et de l'augmentation

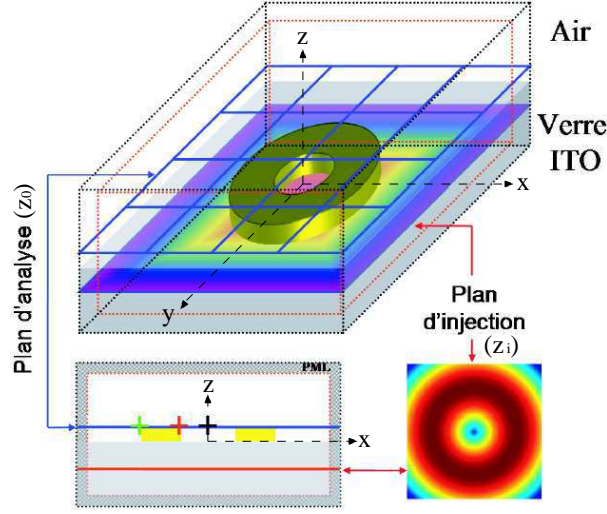


FIG. 3.7 – Représentation de la structure et des conditions de calcul définis pour la simulation.

des capacités mémoire de notre station de calcul. Les dernières études ont été réalisées avec un pas spatial de 5 nm dans chaque direction (soit 100 pas pour le rayon externe et 40 pas pour le rayon interne).

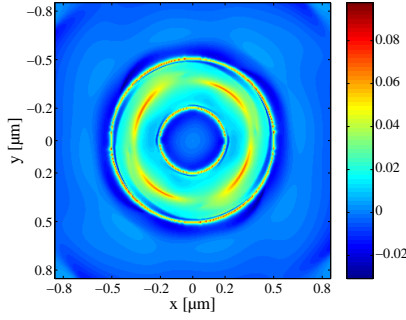
Dans la direction (z) de l'axe optique, la géométrie de l'anneau est moins complexe à décrire. Nous avons fait varier le pas d'échantillonnage Δz de 5 à 10 nm , par pas de 1 nm , et fixé sur toute l'étendue du plan d'analyse une erreur maximale de 10%, par rapport au calcul réalisé avec un pas de 5 nm , estimée à partir de la formule suivante :

$$\varepsilon_{\Delta z} = \frac{|E_{\Delta z=5}| - |E_{\Delta z}|}{|E_{\Delta z=5}|},$$

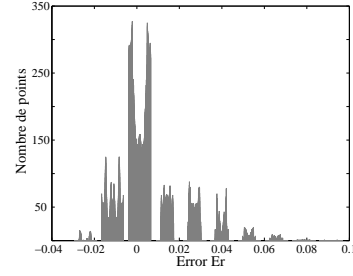
Ceci nous a amené à retenir un pas Δz de 7 nm entraînant une diminution effective du temps de calcul. La figure 3.8 montre la cartographie des erreurs commises calculées en chaque point avec la formule précédente et l'histogramme des erreurs correspondant.

En conclusion, avec un pas d'échantillonnage de 5 nm pour Δx et Δy et de 7 nm pour Δz , la quantité de points utilisés pour la réalisation de la simulation est de $416 \times 416 \times 183$ incluant une couche de *PML* équivalente à 24 pas de calcul pour chaque direction.

Au niveau des paramètres numériques temporels, le pas de calcul Δt est fixé à $5.5 \times 10^{-3}\text{ fs}$; cette valeur satisfait la condition de convergence (équation.-3.12); le temps total de propagation sera défini en fonction du mode d'excitation, continu ou impulsionnel.



(a) Image des erreurs commises en chaque point.



(b) Histogramme de l'image des erreurs.

FIG. 3.8 – Résultat de la différence entre le calcul du champ E réalisé avec $\Delta z = 5 \text{ nm}$ et $\Delta z = 7 \text{ nm}$.

3.3 Méthode des modes couplés

Nous proposons dans la suite de l'étude, de tenter d'établir un lien entre les répartitions de champ obtenues avec la structure en anneau et l'existence des modes plasmoniques dans le cas d'un cylindre infini (équation.-3.13), dont on connaît les expressions analytiques dans un plan transversal. Nous avons utilisé le logiciel "Matlab" pour mettre en place les calculs et la méthode, en s'appuyant sur les travaux de Schröter & *al.* [64], dont les résultats ont été reproduits avec notre code de calcul. Comme précisé précédemment, les unités sont définies dans le système gaussien avec $\varepsilon_0 = \mu_0 = c = 1$.

Dans le plan transverse, en tenant compte de la symétrie radiale existante, les composantes des champs sont décrites par une dépendance azimutale et radiale; elles sont données par les relations suivantes :

$$\begin{aligned}
 E_r(r, \theta) &= \left(\frac{i k_z}{k_j} a_n^j f_n'^j(k_j r) - \frac{n \mu_0 \omega}{k_j^2 r} b_n^j f_n^j(k_j r) \right) \cdot S_n \\
 E_\theta(r, \theta) &= - \left(\frac{n k_z}{k_j^2 r} a_n^j f_n^j(k_j r) + \frac{i \mu_0 \omega}{k_j} b_n^j f_n'^j(k_j r) \right) \cdot S_n \\
 E_z(r, \theta) &= a_n^j f_n^j(k_j r) \cdot S_n \\
 H_r(r, \theta) &= \left(\frac{n \varepsilon_j \omega}{k_j^2 r} a_n^j f_n^j(k_j r) + \frac{i k_z}{k_j} b_n^j f_n'^j(k_j r) \right) \cdot S_n \\
 H_\theta(r, \theta) &= \left(\frac{i \varepsilon_j \omega}{k_j} a_n^j f_n'^j(k_j r) - \frac{n k_z}{k_j^2 r} b_n^j f_n^j(k_j r) \right) \cdot S_n \\
 H_z(r, \theta) &= b_n^j f_n^j(k_j r) \cdot S_n,
 \end{aligned} \tag{3.13}$$

où k_z est la constante de propagation; la variable k_j est liée à k_z par la relation suivante :

$$k_j^2 = \varepsilon_j (\omega/c)^2 - k_z^2, \tag{3.14}$$

a_n^j et b_n^j sont des coefficients complexes, n est un nombre entier ($n = 0, 1, 2, \dots$), j

représente les différents milieux, ε_j est la constante diélectrique du milieu j . Dans chaque cas $f_n^j(k_j r)$ dénote la dérivée de $f_n^j(k_j r)$ par rapport à l'argument $k_j r$. La structure considérée est un cylindre métallique creux, dans l'air, de même dimension que l'anneau envisagé pour la simulation par *FDTD* ($R_{\text{externe}} = a = 500 \text{ nm}$, $R_{\text{interne}} = b = 200 \text{ nm}$). Le métal utilisé est l'or (donc $j = \text{air}, \text{or}, \text{coeur}$), et les constantes diélectriques sont données par :

$$\begin{aligned}\varepsilon_{\text{air}} &= 1 & |r| > a \\ \varepsilon_{\text{or}} &= \varepsilon_{\omega} & a > |r| > b \\ \varepsilon_{\text{coeur}} &= 1 & b > |r| > 0.\end{aligned}$$

La relation de dispersion de l'or a été choisie identique à celle utilisée pour le calcul *FDTD*.

La dépendance azimutale est décrite par les fonctions harmoniques d'ordre n :

$$S_n = \exp(\imath n \theta). \quad (3.15)$$

La dépendance radiale est décrite de la manière suivante. Pour le centre du cylindre, afin d'assurer une solution finie sur l'axe du cylindre, la fonction de Bessel de première espèce \mathcal{J}_n est utilisée. Pour l'extérieur du cylindre, la fonction de Hankel de première espèce \mathcal{H}_n est nécessaire, afin de garantir la condition de rayonnement à l'infini. Le domaine intermédiaire occupé par le métal est décrit par la superposition linéaire des fonctions de Bessel et de Hankel, de première espèce.

$$\begin{aligned}f_n^{\text{air}}(k_{\text{air}} r) &= \mathcal{H}_n(k_{\text{air}} r) \\ f_n^{\text{or}}(k_{\text{or}} r) &= \mathcal{H}_n(k_{\text{or}} r) + \mathcal{J}_n(k_{\text{or}} r) \\ f_n^{\text{coeur}}(k_{\text{coeur}} r) &= \mathcal{J}_n(k_{\text{coeur}} r).\end{aligned}$$

Pour chaque interface entre deux milieux différents (métal-diélectrique), quatre conditions de continuité pour les composantes tangentielles peuvent être appliquées, conduisant au système suivant :

$$\begin{bmatrix} \Re(E_{\theta, r=a}^{\text{air}}) & \Im(E_{\theta, r=a}^{\text{air}}) & \Re(E_{\theta, r=a}^{\text{or}, \mathcal{H}}) & \Im(E_{\theta, r=a}^{\text{or}, \mathcal{H}}) & \Re(E_{\theta, r=a}^{\text{or}, \mathcal{J}}) & \Im(E_{\theta, r=a}^{\text{or}, \mathcal{J}}) & 0 & 0 \\ E_{z, r=a}^{\text{air}} & 0 & E_{z, r=a}^{\text{or}, \mathcal{H}} & 0 & E_{z, r=a}^{\text{or}, \mathcal{J}} & 0 & 0 & 0 \\ \Im(H_{\theta, r=a}^{\text{air}}) & \Re(H_{\theta, r=a}^{\text{air}}) & \Im(H_{\theta, r=a}^{\text{or}, \mathcal{H}}) & \Re(H_{\theta, r=a}^{\text{or}, \mathcal{H}}) & \Im(H_{\theta, r=a}^{\text{or}, \mathcal{J}}) & \Re(H_{\theta, r=a}^{\text{or}, \mathcal{J}}) & 0 & 0 \\ 0 & H_{z, r=a}^{\text{air}} & 0 & H_{z, r=a}^{\text{or}, \mathcal{H}} & 0 & H_{z, r=a}^{\text{or}, \mathcal{J}} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \Re(E_{\theta, r=b}^{\text{or}, \mathcal{H}}) & \Im(E_{\theta, r=b}^{\text{or}, \mathcal{H}}) & \Re(E_{\theta, r=b}^{\text{or}, \mathcal{J}}) & \Im(E_{\theta, r=b}^{\text{or}, \mathcal{J}}) & \Re(E_{\theta, r=b}^{\text{coeur}}) & \Im(E_{\theta, r=b}^{\text{coeur}}) \\ 0 & 0 & E_{z, r=b}^{\text{or}, \mathcal{H}} & 0 & E_{z, r=b}^{\text{or}, \mathcal{J}} & 0 & E_{z, r=b}^{\text{coeur}} & 0 \\ 0 & 0 & \Im(H_{\theta, r=b}^{\text{or}, \mathcal{H}}) & \Re(H_{\theta, r=b}^{\text{or}, \mathcal{H}}) & \Im(H_{\theta, r=b}^{\text{or}, \mathcal{J}}) & \Re(H_{\theta, r=b}^{\text{or}, \mathcal{J}}) & \Im(H_{\theta, r=b}^{\text{coeur}}) & \Re(H_{\theta, r=b}^{\text{coeur}}) \\ 0 & 0 & 0 & H_{z, r=b}^{\text{or}, \mathcal{H}} & 0 & H_{z, r=b}^{\text{or}, \mathcal{J}} & 0 & H_{z, r=b}^{\text{coeur}} \end{bmatrix} \cdot \begin{pmatrix} a_n^{\text{air}} \\ b_n^{\text{air}} \\ a_n^{\text{or}, \mathcal{H}} \\ b_n^{\text{or}, \mathcal{H}} \\ a_n^{\text{or}, \mathcal{J}} \\ b_n^{\text{or}, \mathcal{J}} \\ a_n^{\text{coeur}} \\ b_n^{\text{coeur}} \end{pmatrix} = 0$$

qui peut encore s'écrire sous la forme

$$[\mathfrak{M}(k_z)] \cdot (A) = (0) .$$

Une solution non triviale des coefficients A existe, si le déterminant du système d'équations linéaires est nul ($\det[\mathfrak{M}(k_z)] = 0$). La dispersion des modes possibles du cylindre est obtenue en calculant numériquement les zéros de ce déterminant dans l'espace (k_z, w) , fournissant ainsi tous les modes électromagnétiques du cylindre.

3.3.1 Distribution du champ

Le système d'équations généré à partir des conditions aux limites, est un système indéterminé. Pour calculer les coefficients a_n^j et b_n^j , il est nécessaire de rajouter une condition pour transformer le système d'équations en un système déterminé ; nous avons choisi de fixer $|E_z| = 1$ sur l'interface air-métal. En ajoutant cette condition, le système peut être réécrit de la manière suivante :

$$\begin{bmatrix} \mathfrak{M} \\ 1 \ 0 \ 0 \ 0 \ 0 \ 0 \ 0 \end{bmatrix} \cdot A = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} .$$

Finalement, le système étant déterminé, les coefficients a_n^j et b_n^j sont calculés, et la distribution du champ est reconstruite à partir des équations-3.13.

3.3.2 Intégrales de recouvrement

Le calcul précédent fournit les modes électromagnétiques qui peuvent être couplés dans le cylindre métallique ; ils forment une base ortho-normale. Par conséquent, tout champ électromagnétique C peut être décomposé en une superposition linéaire de ces modes :

$$C = \sum_n (a_n \mid M_n^j \mid S_n + b_n \mid M_n^j \mid S_n^*) . \quad (3.16)$$

Les coefficients a_n et b_n représentent le poids du mode M_n sur le champ C . Le calcul des coefficients nécessite la définition du produit scalaire entre deux champs quelconques C et M comme :

$$\langle C \| M \rangle = \int_{plan} \left[\sum_j (E_c^j \cdot E_m^{j*} + H_c^j \cdot H_m^{j*}) dx dy \right]; \quad j = x, y, z. \quad (3.17)$$

On peut noter que cette définition permet de vérifier la condition d'ortho-normalisation des modes appartenant à la base :

$$\delta(m, n) = \langle M_m \| M_n \rangle, \quad (3.18)$$

où $\delta(m, n)$ est la fonction de Dirac. Finalement pour tout champ C , le poids de chaque mode est calculé à partir des relations suivantes :

$$\begin{aligned} a_n &= \langle C \| (| M_n | S_n) \rangle \\ b_n &= \langle C \| (| M_n | S_n^*) \rangle. \end{aligned} \quad (3.19)$$

En résumé, ce modèle décrit les modes d'une structure cylindrique et leurs poids respectifs pour un champ quelconque C . Donc, si le champ C est le champ incident, les coefficients a_n et b_n donnent les modes couplés par le cylindre. De plus, ce modèle analytique permet d'étudier les modes en fonction de la longueur d'onde (courbes de dispersion) ou en fonction des dimensions, sous condition que la structure présente une symétrie axiale.

3.4 Résultats et interprétations

Dans une première étape, on examine le comportement en champ proche suivant deux approches complémentaires : l'étude spectrale du champ électromagnétique modifié par la présence d'un anneau d'or (géométrie 3D) basée sur la simulation *FDTD* suivant différents modes de polarisation, et l'analyse complémentaire des modes couplés dans un cylindre métallique infini (analyse 2D).

En fin d'étude, nous examinons les modifications du comportement spectral, en reprenant la structure annulaire de base, mais en envisageant des variations dans la géométrie, sous forme de coupures radiales ou azimutales.

3.4.1 Etude de l'anneau métallique

Analyse spectrale

L'analyse spectrale est réalisée en simulant l'interaction d'une impulsion lumineuse de courte durée avec la structure présentée précédemment sur la figure 3.7. Les distributions d'amplitude des trois composantes (x , y et z) des champs \mathbf{E} et \mathbf{H} (au total 6 composantes), sont recueillies dans un plan d'analyse à chaque pas temporel du calcul. On dispose donc pour chaque champ, d'un volume de données $\mathbf{g}(x, y, z_0, t)$, où t est le temps et x , y sont les coordonnées cartésiennes dans le plan d'analyse fixé à $z = z_0$, perpendiculaire à la direction de propagation du champ. Afin de préciser les effets spécifiques dûs à la présence de l'anneau métallique, les champs \mathbf{g}_a et \mathbf{g}_v sont calculés, dans le plan d'analyse, avec et sans l'anneau respectivement. Pour respecter les conditions expérimentales d'inspection en champ proche, ce plan est placé au plus près de l'anneau, soit à $z_0 = 7$ nanomètres de la face supérieure de l'anneau, qui correspondent à un pas de calcul spatial dans la direction z , (voir la figure 3.7).

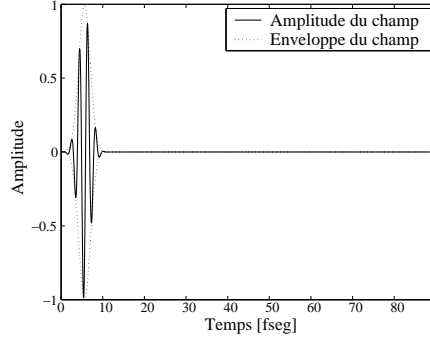
Ensuite, les distributions d'intensité spectrales des champs dans le plan d'analyse, sont obtenues par transformation de Fourier :

$$G_i(x, y, z_0, \omega) = \sum_m \left| \sum_n \mathbf{g}_{i,m}(x, y, z_0, n \cdot \Delta t) \exp(-j \omega n \cdot \Delta t) \right|^2 ; \quad m = x, y, z . \quad (3.20)$$

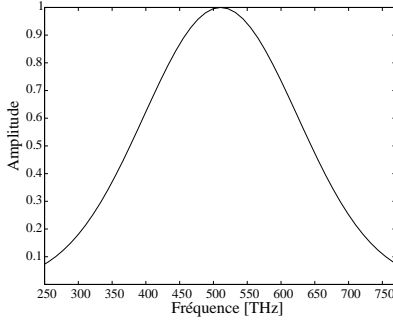
où i représente les indices a ou v . Notons que $G_i(x_0, y_0, z_0, \omega)$ correspond à l'intensité spectrale au point (x_0, y_0, z_0) et $G_i(x, y, z_0, \omega_0)$ représente la distribution d'intensité spectrale dans le plan d'analyse pour la fréquence ω_0 ³.

Caractéristiques du champ incident Pour réaliser une analyse spectrale sur tout le domaine des longueurs d'onde visibles ($\lambda_0 = 587.4 \text{ nm}$), une impulsion correspondante à un intervalle spectral entre $350 - 670 \text{ THz}$, centré sur la fréquence 510 THz et de durée temporelle égale à $1,9762 \text{ fs}$ (τ dans l'équation-3.11), est utilisée pour fixer la durée d'injection du champ. Le temps de calcul a été choisi suffisamment grand, non seulement pour garantir que l'impulsion lumineuse puisse parcourir le volume de calcul, mais aussi que le champ soit négligeable dans la structure ($\approx 90 \text{ fs}$, $2^{14} \Delta t$). La figure 3.9 présente le profil temporel normalisé de l'injection ($\mathbf{g}_v(x_0, y_0, z_0, t)$) et la courbe spectrale normalisée correspondante ($G_v(x_0, y_0, z_i, \omega)$), calculée à partir de l'équation 3.20, en un point ($x_0 = 0, y_0 = 0$) dans le plan d'injection $z = z_i$.

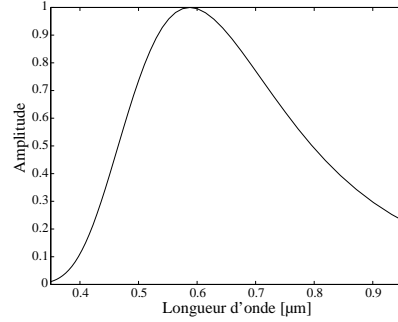
³Par abus de langage, nous utiliserons sans distinction le terme fréquence également pour la pulsation



(a) Profil temporel du champ incident.



(b) Spectre en fréquence du profil temporel.



(c) Spectre en longueur d'onde du profil temporel.

FIG. 3.9 – Comportement temporel et spectral du champ incident.

Spectre chromatique Un spectre normalisé en chaque point du plan d'analyse peut être défini par

$$S(x_i, y_i, z_0, \omega) = N(x_i, y_i, z_0) \frac{G_a(x_i, y_i, z_0, \omega)}{G_v(x_i, y_i, z_0, \omega)}, \quad (3.21)$$

où $N(x_i, y_i, z_0) = \max [G_v(x_i, y_i, z_0, \omega)]$, sont des coefficients de normalisation pris sur le volume de calcul de G_v . La fonction S ainsi définie permet de comparer quantitativement les spectres calculés en chaque point du plan d'analyse ($z = z_0$) en s'affranchissant de la distribution chromatique du faisceau incident et de la non homogénéité de la distribution d'amplitude du champ pour les différents cas de polarisation étudiés.

Les figures 3.10 et 3.11 montrent les variations de la fonction $S(x_i, y_i, z_0, \omega)$ sur une ligne pour les polarisations classiques, linéaire et circulaire, et celles à symétrie axiale, radiale et azimutale, respectivement. Pour la polarisation linéaire, deux lignes sont considérées : la ligne suivant la direction de polarisation du champ électrique ($y = 0$), et la ligne perpendiculaire ($x = 0$). A cause de la symétrie des champs, seule la ligne ($y = 0$) est considérée pour les autres polarisations, circulaire, radiale et azimutale.

A partir de l'étude spectrale présentée sur les figures 3.10 et 3.11, les courbes correspondantes à cinq points particuliers (notés de **A** à **E**) pour la polarisation linéaire et à trois points (notés de **A** à **C**) pour les polarisations circulaire, radiale et azimutale, dans

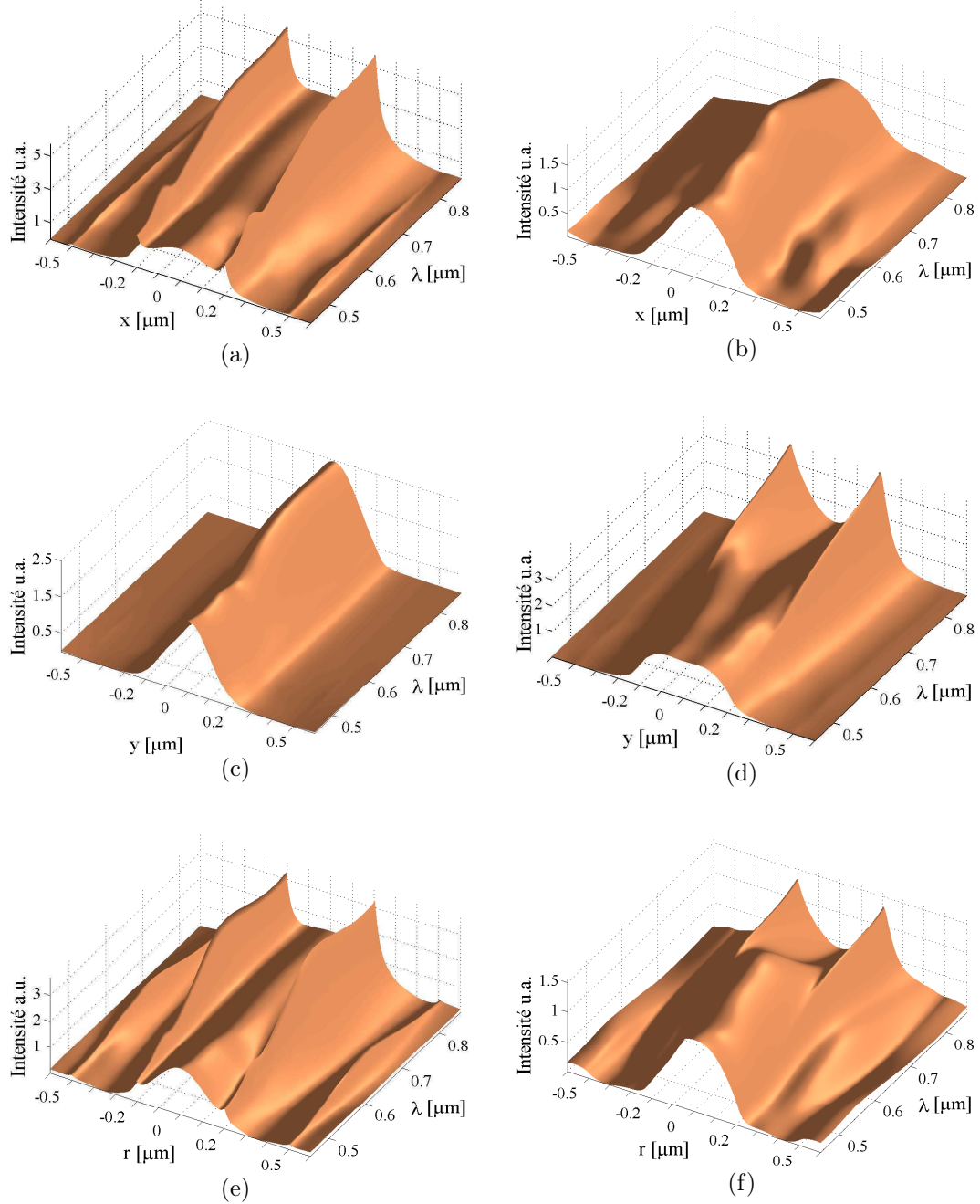


FIG. 3.10 – Spectre normalisé S pour la polarisation linéaire et circulaire (en $a-d$ et e,f respectivement), du champ électrique (a,c,e) et du champ magnétique (b,d,f). (a,b et e,f) pour la ligne $y = 0$ (direction de polarisation du champ électrique pour la polarisation linéaire), (c,d) pour la ligne $x = 0$.

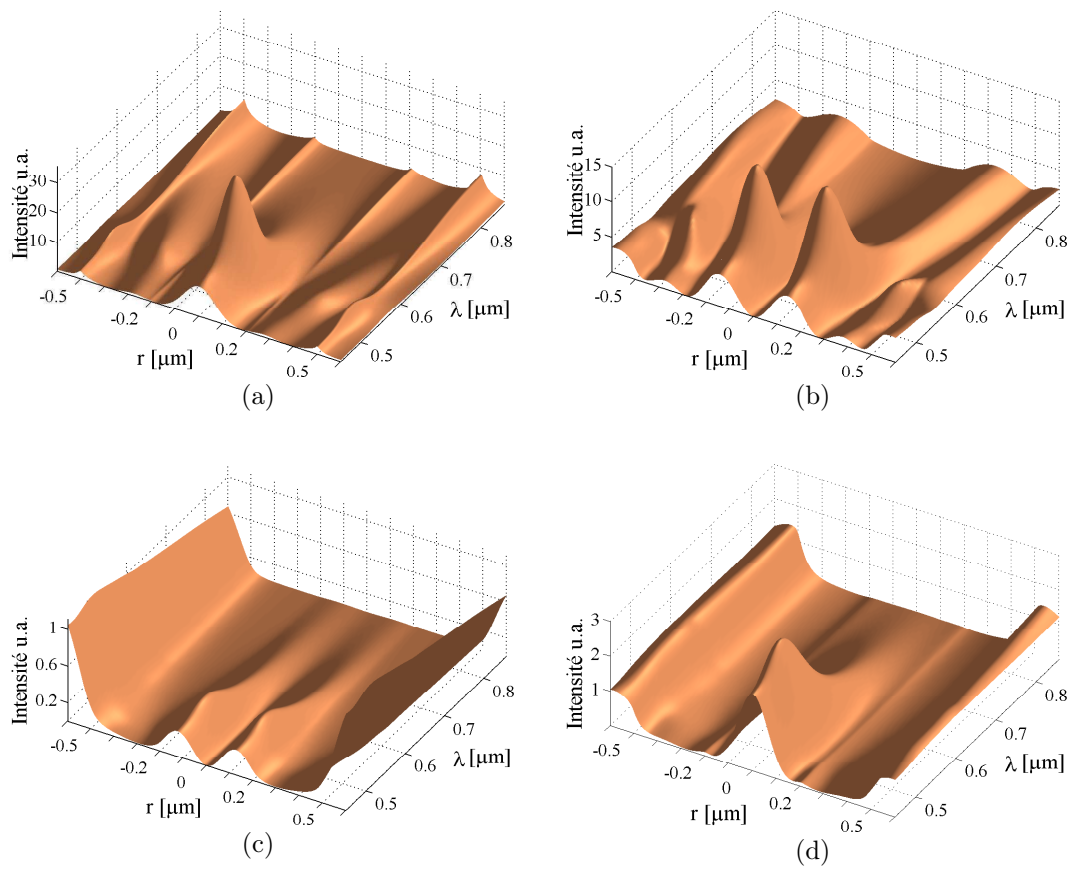


FIG. 3.11 – Spectre normalisé S pour la polarisation radiale et azimutale (en a, b et c, d respectivement) du champ électrique (a, c) et du champ magnétique (b, d) pour la ligne $y = 0$.

le plan d'analyse z_0 , sont reprises sur les figures 3.12 et 3.13. L'intérêt du choix de ces points vient de leur position sur l'anneau : au centre (A), sur les parois internes (B et D) et externes (C et E). Cette sélection se justifie par le fait que des exaltations (dûes à l'apparition de plasmons) sont généralement générées par des discontinuités (cas des parois) et que l'on recherche un effet de confinement du champ au centre de l'anneau, privilégiant le centre de la structure du point de vue de l'émission ou de la collection du rayonnement.

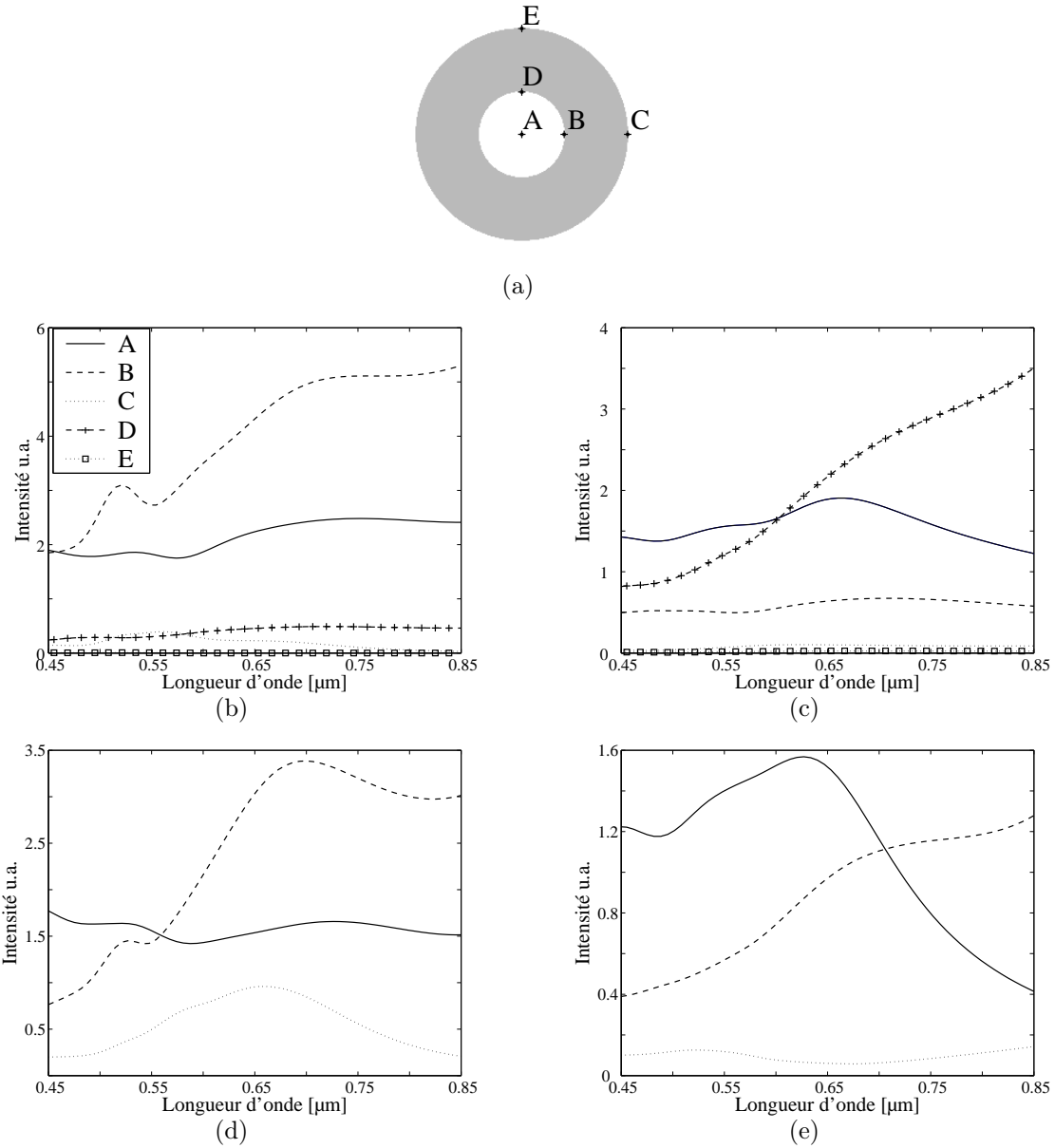


FIG. 3.12 – (a) Position des points d'analyse **A** à **E** par rapport à la géométrie de l'anneau. Courbes spectrales S pour le champ électrique en (b,d), pour le champ magnétique en (c,e). pour la polarisation linéaire suivant la direction (AC), polarisation circulaire en (d,e).

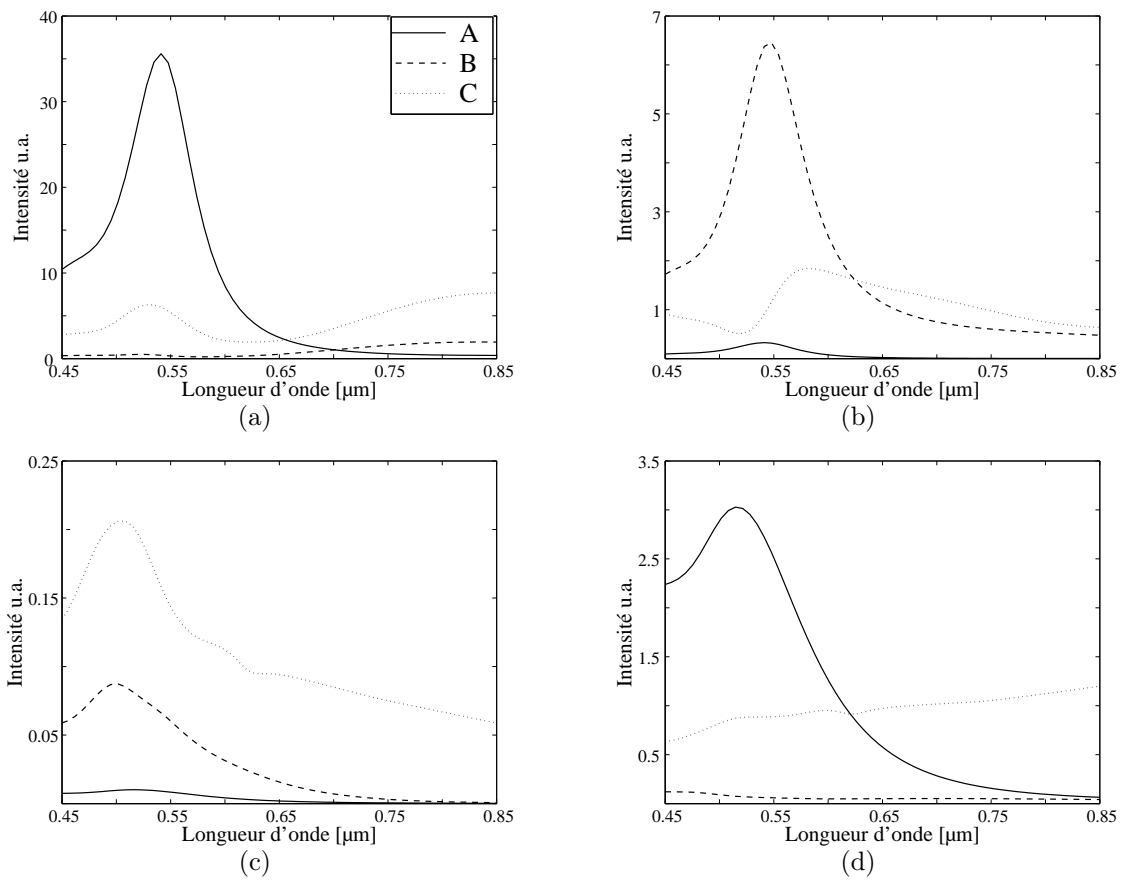


FIG. 3.13 – Courbes spectrales S pour les polarisations radiale en (a,b) et azimuthale en (c,d) ; (a,c) pour le champ électrique et (b,d) pour le champ magnétique.

Distribution d'intensité du champ Afin de préciser l'effet produit par la présence de l'anneau métallique, nous pouvons considérer la fonction

$$F(x, y, z_0, \omega_0) = G_a(x, y, z_0, \omega_0) - G_v(x, y, z_0, \omega_0), \quad (3.22)$$

où ω_0 est une fréquence spécifique qui sera précisée dans la suite, choisie à partir des courbes spectrales des figures 3.12 et 3.13. Cette soustraction numérique améliore la compréhension des variations du champ G_a , qui ne sont plus perturbées par le champ non-uniforme incident G_v . Ceci est visible sur les figures 3.14 et 3.15, montrant la variation d'intensité du champ (F) pour les polarisations retenues. Pour chacun des cas, l'intensité du champ dans le plan d'analyse, calculée avec l'anneau (G_a) a été rapportée dans le coin supérieur droit de chaque distribution.

Expérimentalement, cette opération peut être réalisée, en enregistrant en premier, l'intensité du champ sans anneau (G_v) et ensuite, en soustrayant en chaque point le signal G_a du champ avec anneau. Une estimation de cette différence, expérimentalement possible mais moins rigoureuse, pourrait être réalisée en modulant la distance sonde-échantillon, et en pratiquant une double acquisition alternative champ proche/champ lointain.

Analyse des modes couplés

En appliquant la méthode des modes couplés, exposée dans la section 3.3 précédente, nous avons calculé les courbes de dispersion des modes $n = 0$ et $n = 1$ pour un cylindre infini de mêmes dimensions transverses que celles de l'anneau simulé par *FDTD*.

La courbe de dispersion montre que pour chaque valeur de n , il existe 2 modes pour une fréquence ω donnée. Le mode inférieur correspond à une distribution symétrique de charge de polarisation sur les parois intérieures et extérieures de la structure et le mode supérieur à une distribution asymétrique. Dont, chacun des modes, symétrique et asymétrique, sont représentés par les coefficients $(a_{n,S}, b_{n,S})$ et $(a_{n,A}, a_{n,A})$ respectivement.

A partir des courbes spectrales (figures 3.12 et 3.13), nous avons choisi 2 valeurs de longueur d'onde particulières : $\lambda_0 = 541,2 \text{ nm}$, équivalente au pic du champ électrique pour la polarisation radiale et $\lambda_0 = 752,4 \text{ nm}$, réponse maximale du champ électrique pour la polarisation linéaire, les deux étant examinées au centre de l'anneau. Ensuite, nous avons réalisé un calcul du champ par *FDTD* en régime permanent ($\xi(t) = cste$ dans l'équation 3.9), pour 2 plans d'analyse transversaux à l'axe de propagation. Un premier plan est placé à demi épaisseur de l'anneau ($z = z_1$) et le second est à la même place que pour l'analyse spectrale, c'est à dire à $z = z_0 = 7 \text{ nm}$ au-dessus de la face supérieure de l'anneau, voir figure 3.17. Nous avons déterminé également, une base ortho-normale des modes, pour $n = 0$ et $n = 1$, pour chaque longueur d'onde choisie.

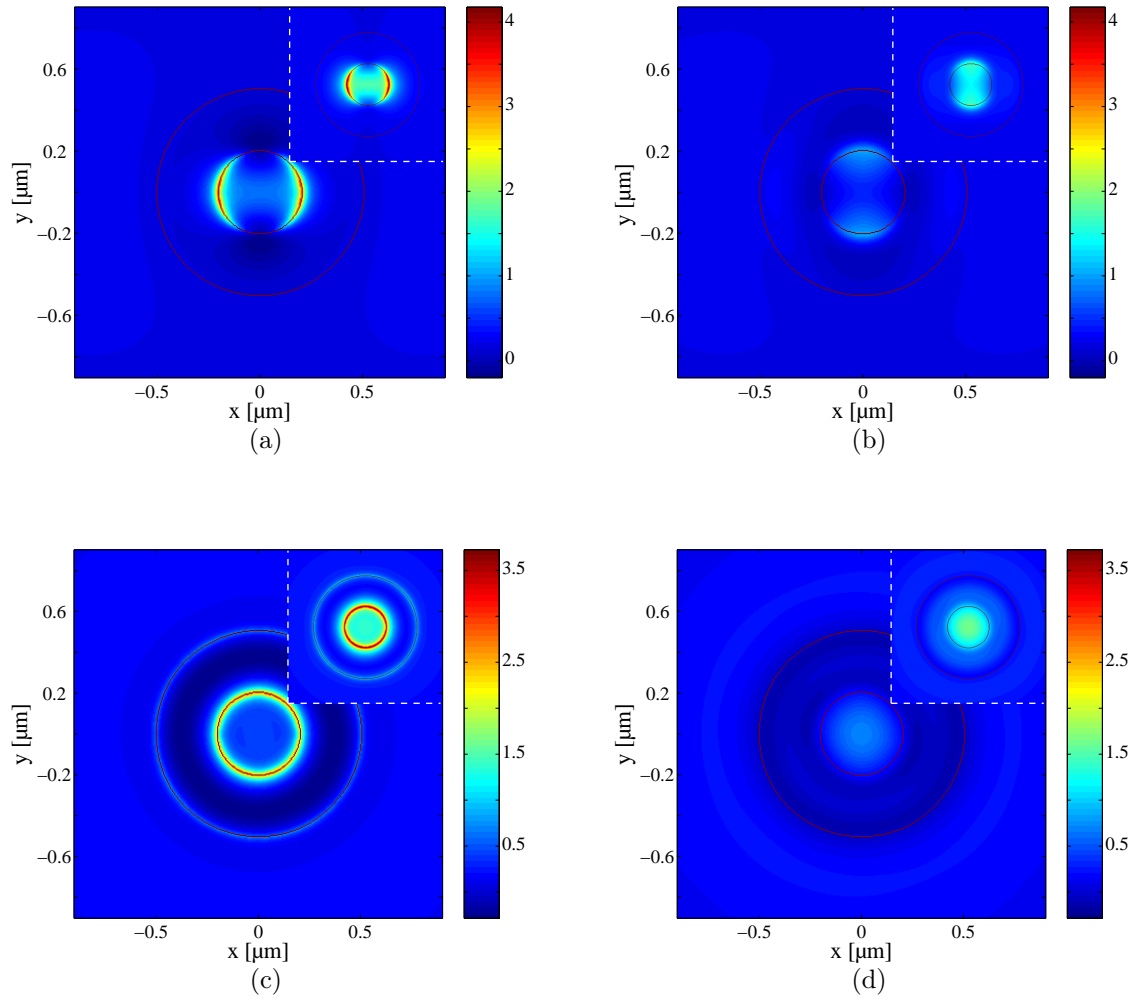


FIG. 3.14 – Variations d'intensité ($F(x, y, z_0, \omega_0)$) du champ électrique (a, c) et du champ magnétique (b, d) pour les polarisations, linéaire (a, b) et circulaire (c, d), $\lambda_0 = 752 \text{ nm}$. Dans le coin supérieur droit, l'intensité du champ simulé avec l'anneau (G_a) sur le plan d'analyse z_0 . Les 2 cercles noirs représentent les bords de l'anneau, 500 nm de rayon extérieur et 200 nm de rayon intérieur).

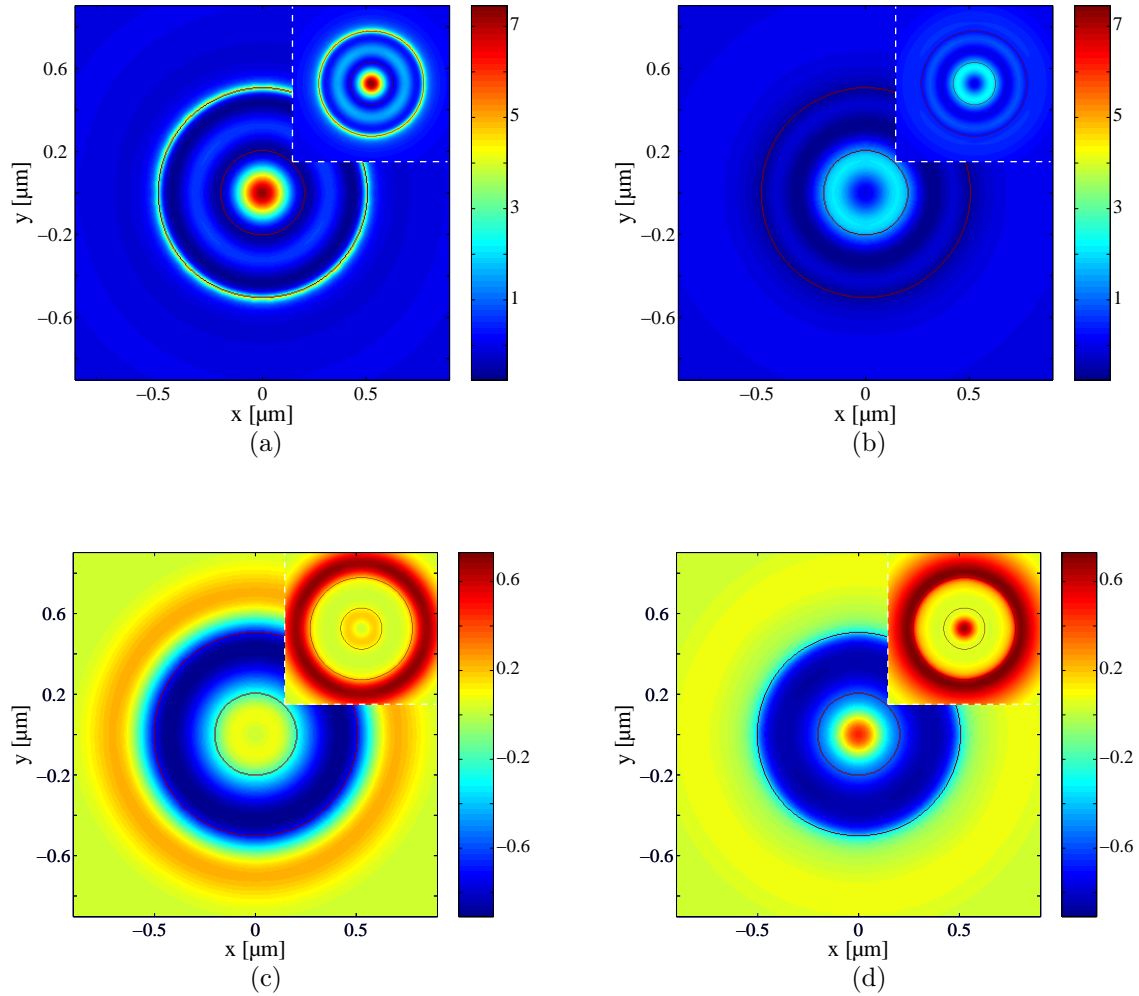


FIG. 3.15 – Variations d'intensité ($F(x, y, z_0, \omega_0)$) du champ électrique (a, c) et du champ magnétique (b, d) pour les polarisations radiale (a, b) où $\lambda_0 = 514 \text{ nm}$, et azimuthale (c, d) où $\lambda_0 = 514 \text{ nm}$. Dans le coin supérieur droit, l'intensité du champ simulé avec l'anneau (G_a) sur le plan d'analyse z_0 . Les 2 lignes noires représentent les bords de l'anneau.

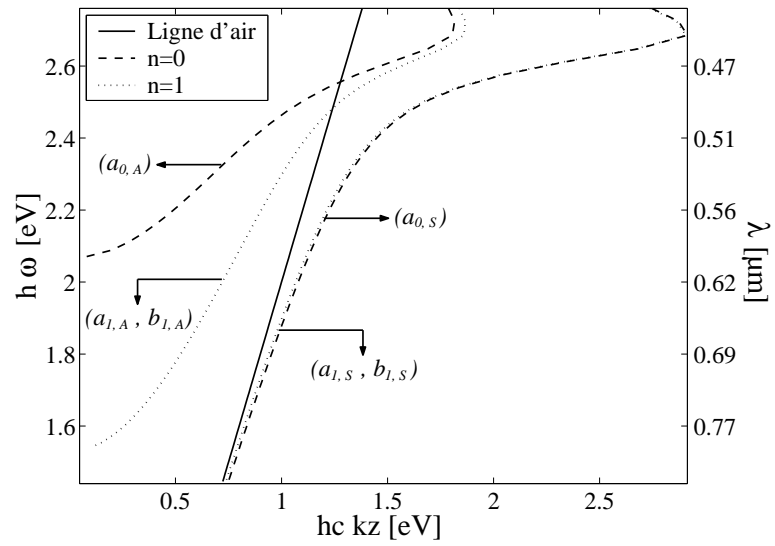


FIG. 3.16 – Courbes de dispersion pour $n = 0$ et $n = 1$, d'un cylindre infini (2D).

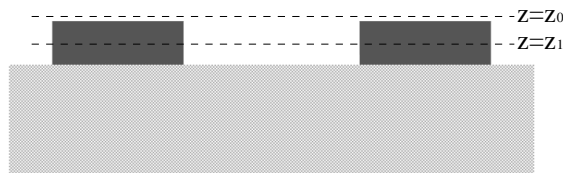


FIG. 3.17 – Position des 2 plans d'analyse pour la simulation *FDTD* en régime permanent.

Par la suite, les coefficients a_n et b_n sont calculés à partir de l'équation 3.19. Sur les graphes de la figure 3.18 nous montrons les valeurs des coefficients. Les différentes courbes correspondent aux valeurs calculées pour chaque distribution :

- la courbe **P1** représente les coefficients pour la distribution de champ G_v ,
- la courbe **P2** ceux pour la distribution de champ G_a ,
- la courbe **P3** ceux pour la distribution de champ calculé sur le plan $z = z_1$ en régime permanent,
- la courbe **P4** ceux pour la distribution de champ calculé sur le plan $z = z_0$ en régime permanent,

Notons que pour le mode $n = 1$, il existe 2 valeurs différentes des coefficients a_n et b_n . Chacun d'entre eux fait référence aux polarisations circulaires droite et gauche, associées au terme $S = e^{\pm i n \theta}$ de l'équation 3.15.

Discussion des résultats

Polarisations linéaire et circulaire. Pour la polarisation linéaire, les courbes de la figure 3.12(b,c) montrent une exaltation au point **B** pour le champ électrique et au point **D** pour le champ magnétique, dans la région des hautes longueurs d'onde. Ceci met en évidence la présence d'un mode plasmonique sur la structure pour la gamme de fréquences considérée. La polarisation linéaire est associée aux modes $n = 1$. Ceci est confirmée par la figure 3.18(a,b), où les poids des modes sont pratiquement nuls pour $n = 0$ et sont égaux pour un même mode $n = 1$; ce dernier est justifié par le fait que la polarisation linéaire peut être considérée comme une superposition linéaire de deux polarisations circulaires de même intensité, une à droite et une à gauche. Alors si l'on regarde les courbes de dispersion de modes sur la figure 3.16, elles montrent une forte dispersion pour les modes associés à cette polarisation ($n = 1$). Ceci peut expliquer l'absence d'une résonance spectrale étroite.

La figure 3.14(a,b) présente la variation d'intensité pour la longueur d'onde $\lambda_0 = 752,4$ nm. Les champs électrique et magnétique, sont localisés sur la paroi interne de l'anneau ; un tel comportement du champ a été précédemment observé avec les pointes métalliques à ouverture [49] et sur le nanocylindre métallique [64]. De plus, cette distribution du champ est similaire à celle présentée dans la référence [128] portant sur le calcul modal de nano-anneaux en coordonnées toroïdales. L'étude réalisée par Schröter & al. [64], a montré qu'un moment dipolaire électrique ou magnétique peut être associé à de telles distributions du champ, selon la longueur d'onde et les dimensions de la structure. A la suite de cette étude [62, 63], il a été montré expérimentalement qu'une pointe métallique à ouverture, dont l'extrémité est assimilable à un nano-anneau, pouvait jouer sous certaines conditions le rôle de nano-collecteur du champ magnétique transverse.

La polarisation circulaire pouvant être considérée comme la superposition de polari-

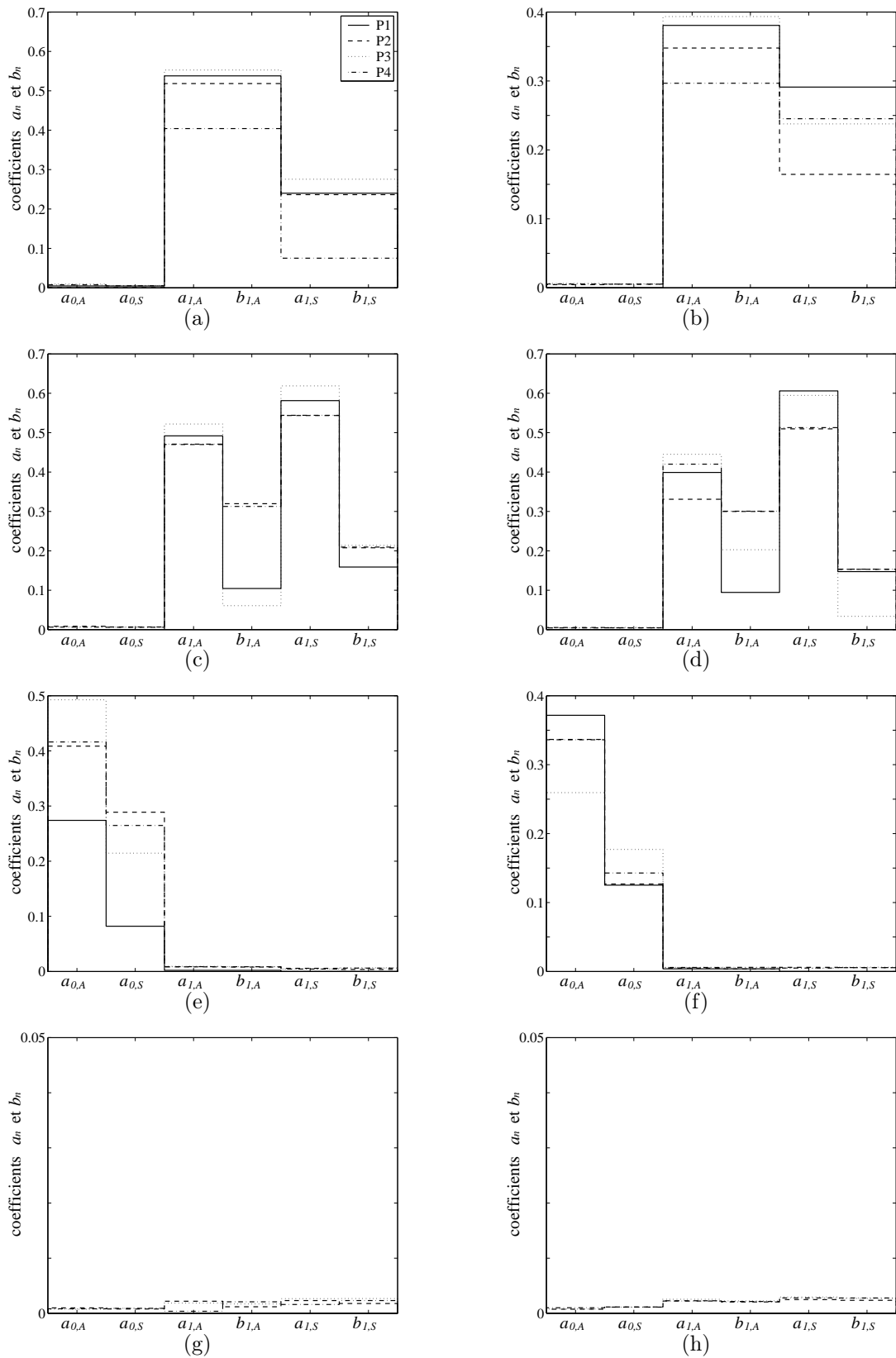


FIG. 3.18 – Poids des modes $n = 0$ et $n = 1$ pour 2 longueurs d'onde différentes (a, c, e, g pour $\lambda = 541.2 \text{ nm}$ et b, d, f, h pour $\lambda = 752.4 \text{ nm}$).

sations linéaires dans toutes les directions, le champ résultant est similaire au cas de la polarisation linéaire avec une homogénéisation azimutale, et présente la symétrie axiale.

Polarisations radiale et azimutale. Dans le cas de la polarisation radiale, une forte résonance du champ électrique et magnétique est observée à la longueur d'onde $\lambda_0 = 541 \text{ nm}$ (voir figure 3.13(a,b)). La figure 3.15(a,b) montre que cette résonance est caractérisée par un fort confinement du champ électrique au centre de l'anneau, alors que le champ magnétique est localisé au voisinage du bord intérieur de l'anneau. Notons que le gain d'intensité du champ électrique par rapport à celle du champ magnétique, est d'un facteur de 2.98. Une analyse détaillée, non rapportée ici, des composantes du champ électrique montre que dans la région centrale, le champ est polarisé longitudinalement. Dans ce cas, la polarisation est associée au mode $n = 0$, ce qui est confirmée par figure 3.18(e,f), où les poids des modes $n = 0$ sont non nuls, de plus on voit que le mode asymétrique ($a_{0,A}$) est le plus représentative des deux modes. Alors, d'après les courbes de dispersion des modes de la figure 3.16, l'effet d'une résonance spectrale étroite peut être associé à une faible dispersion du mode plasmonique asymétrique ($n = 0$).

Dans le cas de la polarisation azimutale (figures 3.13(c,d) et 3.15(c,d)), la situation inverse est observée. Ceci signifie qu'à la fréquence de résonance ($\lambda_0 = 514 \text{ nm}$) le champ magnétique est confiné et exalté au centre de l'anneau, tandis que le champ électrique ne l'est pas. Notons que dans ce cas, le gain d'intensité du champ magnétique apporté par la présence de l'anneau est d'un facteur 3.5, plus fort que dans le cas du champ électrique. Comme précédemment, le champ magnétique confiné est polarisé longitudinalement. L'exaltation est associée à la génération d'un moment magnétique non négligeable au centre de l'anneau, puisque, comme on peut le voir sur la figure 3.18(g,h), aucun mode polarisé azimutalement ne peut exister dans l'anneau.

Ces deux polarisations orthogonales conduisent à des situations symétriques pour le champ électrique et magnétique émis par la nano-structure, toutes deux aboutissant à l'apparition d'un moment dipolaire orienté longitudinalement. Ainsi, un fonctionnement de cette nano-antenne, en mode collection ou émission d'un champ longitudinal électrique ou d'un champ longitudinal magnétique, peut être envisagé suivant le choix de la polarisation. On peut noter que la même propriété peut être aussi obtenue, en focalisant un faisceau polarisé radialement ou azimutalement avec un objectif de grande ouverture numérique, [129, 130]. Mais l'intérêt ici est que l'effet de l'anneau métallique exalte fortement la composante longitudinale du champ, comme il est montré sur la figure 3.13(a,c), où un facteur d'exaltation de 35,5 est estimé pour la polarisation radiale, et de 3,02 pour la polarisation azimutale. Ces conclusions sont reprises dans le tableau 3.4.1 qui donne le rapport entre les maxima respectifs des champs transversaux et longitudinaux. De plus, les chiffres entre parenthèses indiquent les ouvertures numériques correspondantes dans l'air ⁴, estimées d'après la référence [129].

⁴Rappelons que le maximum d'ouverture est égal à 1 dans l'air.

Polarisation radiale	Sans anneau G_v	Avec anneau G_a
$\max [E_z^2] / \max [E_t^2]$	0.3 (0.43)	3.05 (0.91)
Polarisation azimutale		
$\max [H_z^2] / \max [H_t^2]$	0.26 (0.4)	1.12 (0.72)

TAB. 3.1 – Rapport entre les maximums respectifs des champs transversaux et longitudinaux. L'ouverture angulaire dans l'air associée à ce rapport, et calculée d'après la référence [129] est donnée entre parenthèses.

En conclusion, comme déjà décrit pour les antennes papillon et dipolaires électriques dans le visible [113, 114, 115], la polarisation est le paramètre central pour la définition des propriétés d'émission et de collection d'une nano-antenne. Ainsi, il est possible d'imaginer une nouvelle classe de nano-sources capables d'émettre un champ confiné électrique ou magnétique, simplement en basculant d'une polarisation radiale à une polarisation azimutale, et en choisissant la bande spectrale appropriée. On peut penser également attendre un comportement identique en changeant les dimensions de l'anneau de sorte que les champs, électrique ou magnétique, soient exaltés pour deux longueurs d'onde différentes.

3.4.2 Cas d'un anneau segmenté

La partie finale de ce chapitre tente de répondre à la question suivante : *est-ce que l'anneau entier représente la meilleure solution pour le confinement et l'exaltation du champ électromagnétique ?* Dans la suite de l'étude, nous envisageons de pratiquer diverses segmentations sur l'anneau et d'appliquer la même stratégie d'analyse spectrale par *FDTD*, à partir des distributions de champs calculées dans la plan d'analyse $z_0 = 7 \text{ nm}$ de la face supérieure de l'anneau, et en considérant seulement les deux polarisations radiale et azimutale.

Segmentation radiale et azimutale

Dans le premier cas, la structure annulaire présente des segmentations suivant une direction passant par le centre. La largeur de cette segmentation est de 50 nm quand l'anneau est coupé en 2, 4 et 12 parts ; et de 25 nm quand il est segmenté en 24 parts. Dans le second cas, la structure est formée de 4 anneaux concentriques également espacés, les deux anneaux internes et externes ayant la même épaisseur, alors que les deux anneaux de la partie centrale sont plus épais, pour garder constante la largeur de la partie évidée. Les schémas de la figure 3.19 précisent les géométries proposées dans chacun des cas.

Segmentation radiale Au centre de l'anneau (point **A**, sur la figure 3.12(a)) les courbes spectrales S , définies par l'équation 3.21 et les distributions de variations du champ F ,

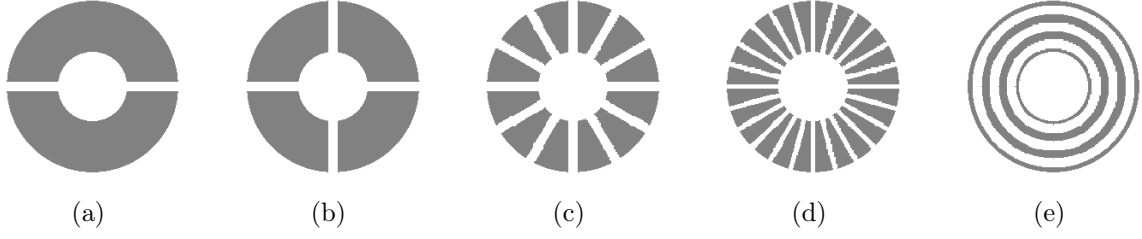


FIG. 3.19 – Représentation des anneaux segmentés radialement (a-d) et azimuthalement (e). La largeur de coupure est de 50 nm (a-c,e) et de 25 nm (d).

définies par l'équation 3.22 sont présentées sur les figures 3.20(a,b) et 3.21(a-e). Pour la polarisation radiale, nous trouvons qu'une segmentation radiale ne produit pas de variation globale significative dans le comportement du dipôle électrique longitudinal (voir figure 3.20(a)), par rapport à l'anneau entier. Par contre pour la polarisation azimuthale, le confinement et le gain du champ magnétique, observés pour l'anneau complet, sont annulés au fur et à mesure que l'on segmente l'anneau (voir figure 3.20(b)).

Segmentation azimuthale Ce type de segmentation produit un effet inverse à celui produit par une segmentation radiale. Sur les courbes présentées sur la figure 3.20(c,d), on peut voir que l'exaltation et confinement produit par l'anneau entier est annulé par cette segmentation dans le cas de la polarisation radiale (voir figure 3.20(c)) ; tandis qu'une légère variation de l'effet est mise en évidence pour la polarisation azimuthale (voir figure 3.20(d)). Ceci est confirmé par les représentations de la variation d'intensité du champ (F) sur les figures 3.21(f) et 3.22(d)

Finalement, on remarque que les deux types de segmentation sont complémentaires, ils permettent de conserver ou d'annuler les propriétés d'exaltation et de confinement suivant le type de polarisation.

Segmentation sur les parois de l'anneau

Les résultats obtenus pour l'anneau complet mettent en évidence, non seulement la présence d'un confinement et d'une exaltation au centre de l'anneau, mais aussi une présence du champ sur ses bords ; on peut alors examiner le cas où les bords de l'anneau sont seuls segmentés. Une représentation des différentes configurations retenues est montrée sur la figure 3.23. Les dimensions de la partie segmentée sont de 50nm en profondeur et 25nm en largeur.

La figure 3.24, présente les courbes spectrales S pour le champ électrique en polarisation radiale et pour le champ magnétique en polarisation azimuthale. La courbe en trait plein correspond à la simulation avec l'anneau entier et les courbes en pointillés

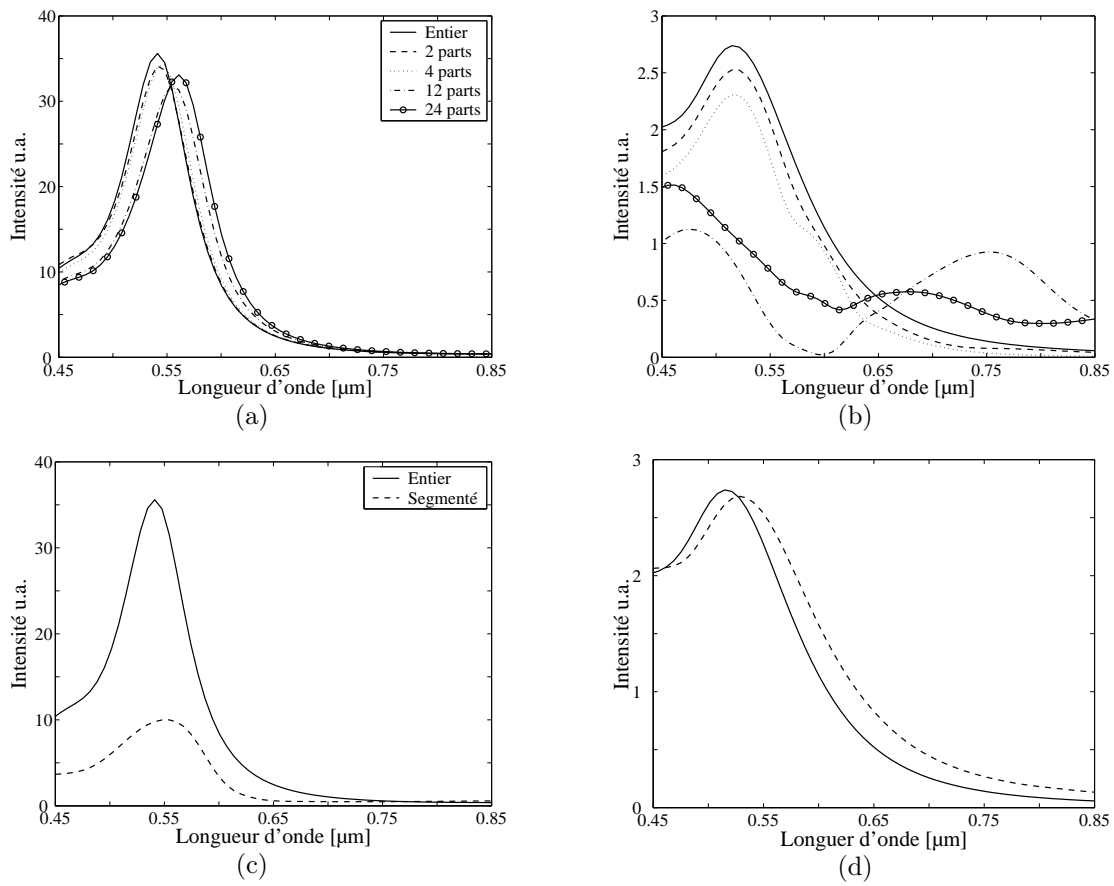


FIG. 3.20 – Courbes spectrales S au centre de l'anneau dans le plan d'analyse ($z = z_0 = 7nm$). (a,c) pour le champ électrique et (b,d) pour le champ magnétique. (a,b) pour un anneau segmenté radialement en polarisation radiale et azimutale respectivement, (c,d) pour un anneau évidé azimutalement en polarisation radiale et azimutale respectivement.

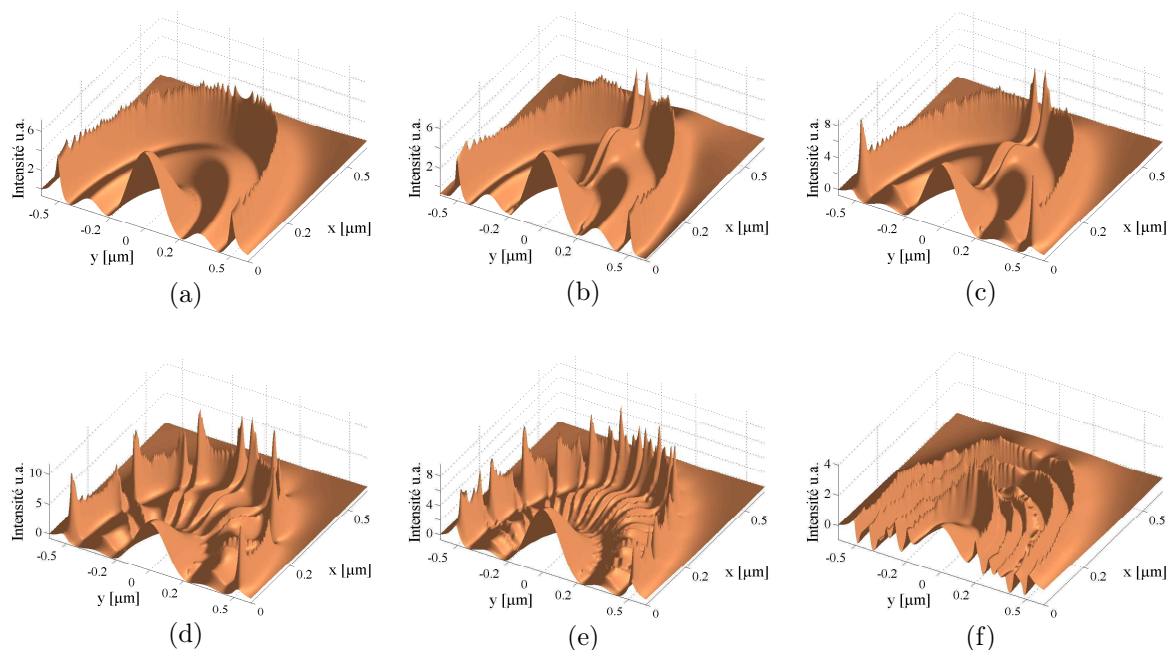


FIG. 3.21 – Variation de l'intensité du champ électrique F pour la polarisation radiale. (a) pour l'anneau complet, (b-e) quand l'anneau est segmenté radialement, (f) quand l'anneau est évidé azimutalement.

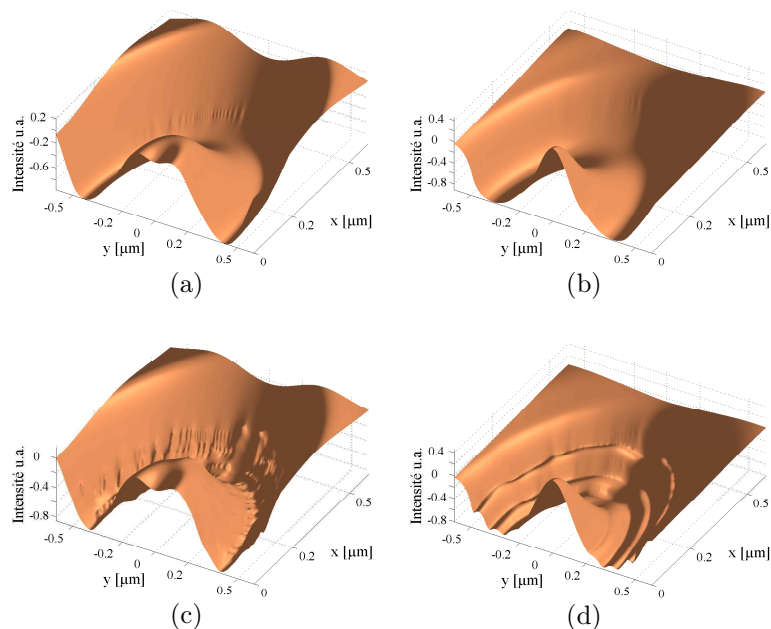


FIG. 3.22 – Variation de l'intensité du champ F pour la polarisation azimutale. (a,b) champ électrique et magnétique pour l'anneau entier respectivement, (c,d) champ électrique et magnétique pour l'anneau évidé azimutalement.

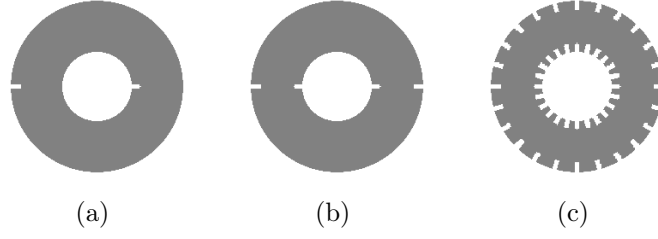


FIG. 3.23 – Structures annulaires segmentées sur les bords interne et externe.

correspondent aux simulations avec les structures représentées sur la figure 3.23(a,b,c), respectivement.

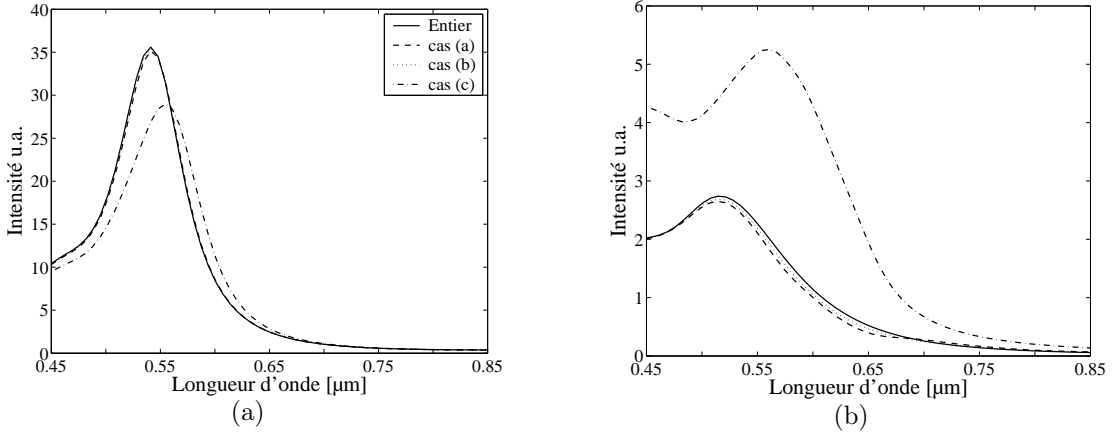


FIG. 3.24 – Courbes spectrales S au centre de l'anneau dans le plan d'analyse ($z = z_0$), pour un anneau segmenté sur les parois interne et externe. (a) pour le champ électrique en polarisation radiale, (b) pour le champ magnétique en polarisation azimutale.

Polarisation radiale Pour ce type de segmentation des parois, la courbe spectrale de la figure 3.24(a) et la distribution d'intensité F de la figure 3.25, montrent que dans le cas de la double segmentation ((c) de la figure 3.23), le confinement et l'exaltation du champ au centre de l'anneau sont plus faibles que dans les autres cas. De plus, la figure 3.25(c) met en évidence que le champ électrique sur les bords de la paroi externe devient important, de même amplitude que le champ confiné au centre ; ce qui ne correspond pas à la définition d'un capteur ou d'un émetteur optimal.

Polarisation azimutale A partir des courbes spectrales S de la figure 3.24(b), on peut conclure que la structure (c) de la figure 3.23 permet d'obtenir une meilleure exaltation du champ magnétique au centre de l'anneau. Mais si l'on compare avec les variations des figures 3.26 (c) et (f), on voit que cette configuration entraîne également une exaltation du champ électrique sur les parois de l'anneau. Cette exaltation est même plus importante que le champ magnétique au centre de l'anneau.

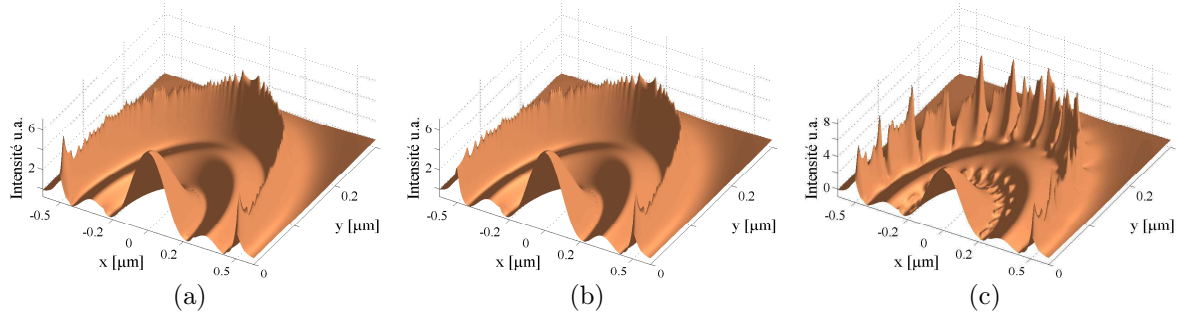


FIG. 3.25 – Variation F du champ électrique en polarisation radiale pour les anneaux segmentés sur les parois internes et externes représentés sur la figure 3.23 respectivement.

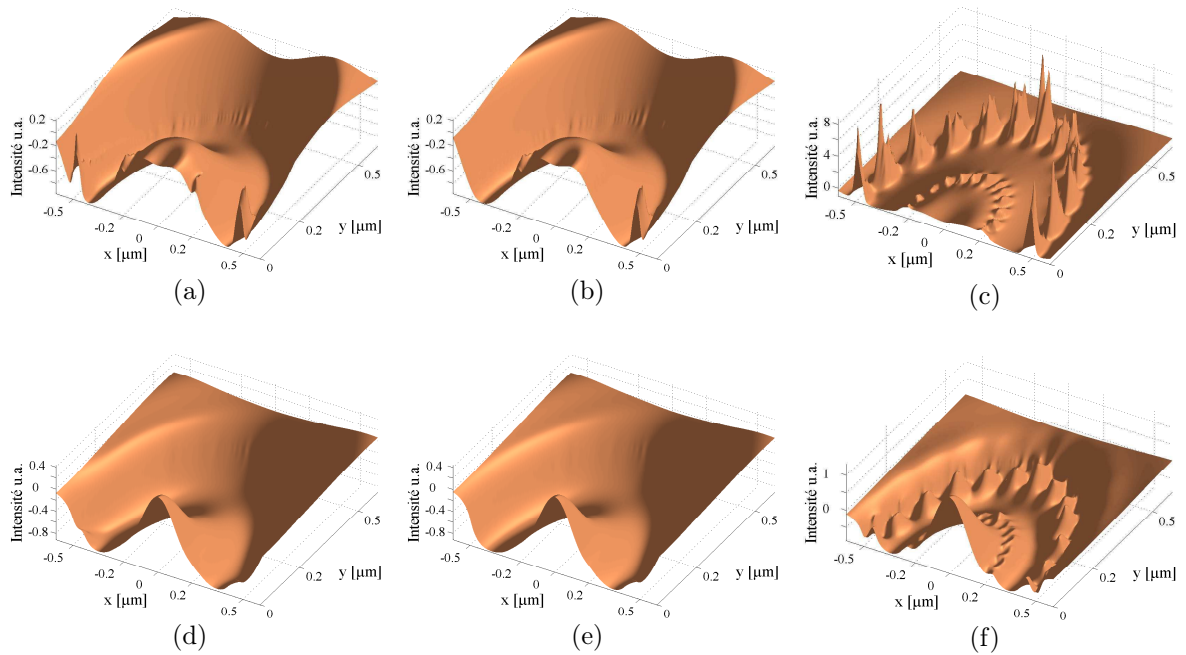


FIG. 3.26 – Variation F du champ en polarisation azimuthale pour les anneaux segmentés sur les parois internes et externes représentés sur la figure 3.23 respectivement. (a-c) pour le champ électrique, et (d-f) pour le champ magnétique.

Un cas optimal Les résultats obtenus pour la structure (c) de la figure 3.23, nous a conduit à étudier une dernière configuration, dans laquelle seules des segmentations sur la paroi interne sont réalisées. Ce dernier cas est représenté sur la figure 3.27.

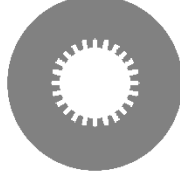


FIG. 3.27 – Anneau segmenté sur le bord interne.

Les courbes spectrales S et les variations du champ F sur les figures 3.28 et 3.29, respectivement, montrent que cette configuration permet de maintenir le confinement et l'exaltation du champ électrique dans le cas de la polarisation radiale. Une amélioration dans l'exaltation du champ magnétique, tout en gardant le confinement obtenu par l'anneau entier, est également mise en évidence pour la polarisation azimutale. De plus, cette configuration n'entraîne pas de fortes exaltations du champ électrique sur les parois, comme cela a été rencontré dans le cas de l'anneau présenté sur la figure 3.23(c).

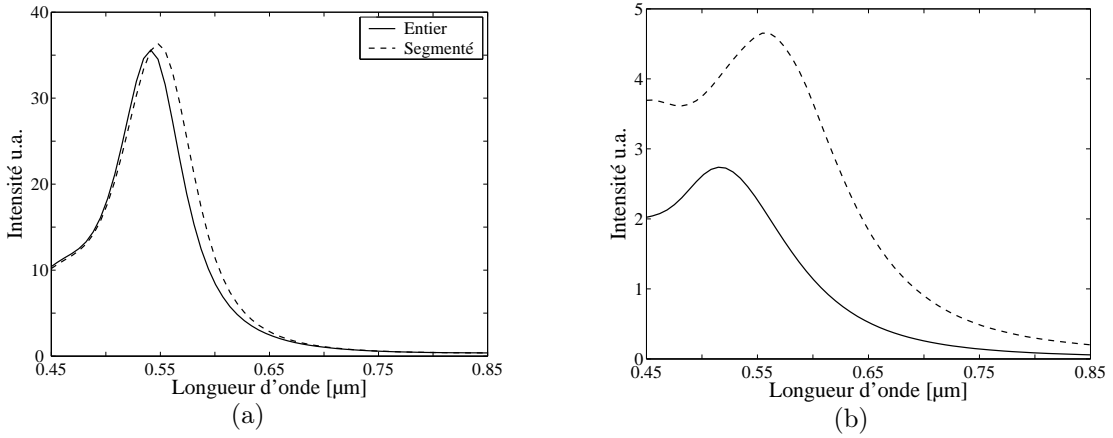


FIG. 3.28 – Courbe spectrales S au centre de l'anneau sur le plan d'analyse ($z = z_0$), pour l'anneau segmenté sur la paroi interne représenté sur la figure 3.27. (a) pour le champ électrique en polarisation radiale, (b) pour le champ magnétique en polarisation azimutale.

Finalement, on peut conclure que parmi les segmentations envisagées ce dernier cas correspond à une solution optimale permettant d'améliorer les propriétés magnétiques d'émission/de collection de la nano-antenne en polarisation azimutale, tout en conservant l'effet de confinement central du champ électrique obtenu en polarisation radiale.

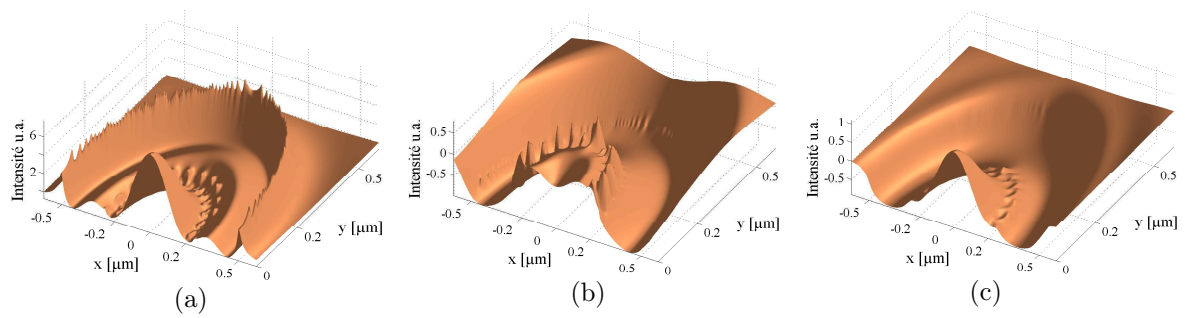


FIG. 3.29 – Variation F du champ en polarisation radiale (a) et azimutale (b,c) pour l'anneau segmenté sur la paroi interne représenté sur la figure 3.27. (a,b) pour le champ électrique, (c) pour le champ magnétique.

Chapitre 4

Fabrication des nano-structures

4.1 Introduction

Ce chapitre est consacré à la fabrication des nano-antennes annulaires. Ces dernières devant avoir un diamètre externe de quelques centaines de nanomètres, la fabrication fera appel aux techniques ultimes spécifiques à cette gamme dimensionnelle.

Trois techniques de fabrication ont été développées. La première technique met en oeuvre le processus de lithographie électronique. La deuxième, basée sur les travaux de Aizpurua & *al.* [131, 132], est le résultat de la combinaison entre la lithographie électronique et l'attaque ionique argon (combinaison originale). Enfin, la troisième technique met en jeu l'usinage par faisceau d'ions focalisé (*FIB*). Ces trois technologies sont disponibles à la centrale de technologie *MIMENTO* de l'Institut *FEMTO-ST*.

Nous allons tout d'abord faire une présentation des techniques de micro et nano fabrication actuelles. Puis, nous décrirons à la fois les solutions retenues et les démarches technologiques développées pour la réalisation des nano-anneaux. Enfin, nous discuterons les résultats obtenus pour chaque technique, en précisant les avantages et les inconvénients de chaque procédé de fabrication.

4.2 État de l'art de la lithographie

La lithographie est un processus de transfert de modèles géométriques sur une couche mince de résine, généralement appelée *résistance*, déposée sur la surface d'un échantillon. L'épaisseur de la couche dépend de la nature du matériau et de l'application post-lithographie envisagée. Selon la sensibilité de la résine, une lithographie optique,

rayon X ou électronique peut être mise en oeuvre. Ce transfert peut être réalisé par un masque ou par écriture directe. Une technique alternative consiste à graver directement la résine à l'aide d'un *FIB*. Ces techniques sont répertoriées et étudiées, dans les références [133, 134, 135, 136, 137]. La figure 4.1 reprend les processus de lithographie possibles.

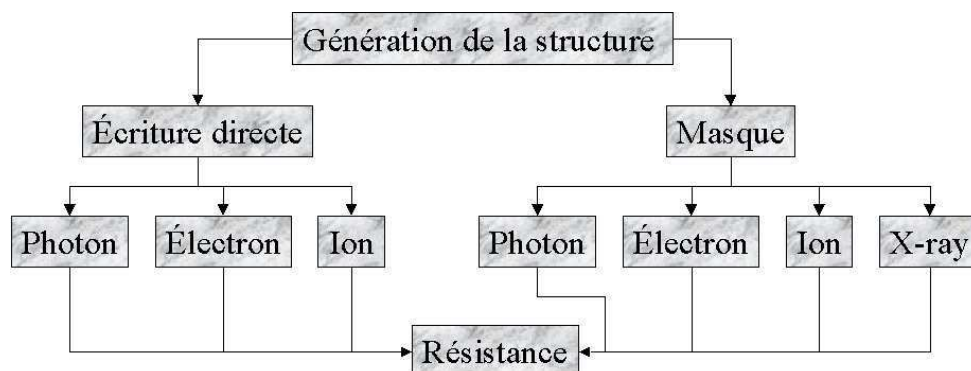


FIG. 4.1 – Les procédés de lithographie

Nous allons à présent analyser plus en détail chacune des techniques de lithographie :

- *Lithographie optique* : dans ce processus la lumière *UV* est utilisée pour insoler le polymère. On peut insoler la résine soit par des procédés d'écriture directe à balayage, soit par des procédés de masquage. Son principal désavantage est la diffraction des photons qui va limiter la résolution latérale finale du processus.
- *Lithographie par rayons X* : cette technique emploie une méthode de masquage similaire à celle utilisée en optique. La longueur d'onde des rayons *X* ($0.4\text{-}5\text{ nm}$) est beaucoup plus petite que celle de la lumière *UV* ($200\text{-}400\text{ nm}$). Ainsi, les effets négatifs de la diffraction sur le processus de lithographie sont considérablement réduits. De fait, une meilleure résolution latérale est atteinte. Cependant, on assiste à un effet d'ombrage parasite croissant du masque sur la résine à mesure que l'on s'éloigne latéralement de la source.
- *Lithographie électronique* : les électrons étant associés à une longueur d'onde d'environ 0.1 nm , cette technique offre une meilleure résolution latérale. La résolution n'est plus limitée par la diffraction, mais par la diffusion résultant de l'interaction électron-matériau. Les avantages de cette méthode sont la très haute résolution, la maîtrise des faisceaux électroniques par des lentilles magnétiques et la grande profondeur de champ associée à la focalisation. Matsui [138] présente un aperçu des diverses méthodes de fabrication de nano-structures à l'aide d'un faisceau d'électrons. Ici aussi, les procédés d'écriture directe et de masquage sont possibles.
- *Lithographie ionique* : la source est un faisceau d'ions focalisé (*FIB*) qui vient graver directement la résine. Elle fournit une résolution supérieure à celle des autres techniques de lithographie, ceci pour deux raisons. Tout d'abord, la longueur d'onde

associée aux ions est inférieure à celle associée aux électrons. Enfin les ions subissent une dispersion plus faible dans les matériaux que les électrons. En revanche, ils provoquent une attaque irréversible sur l'échantillon.

Nous allons à présent décrire les trois techniques retenues parmi celles présentées ci-dessus pour la fabrication des nano-anneaux .

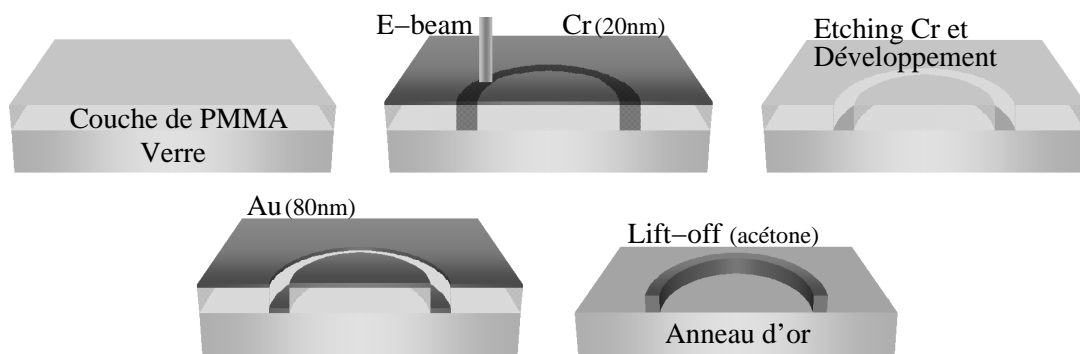
4.3 Technique par lithographie électronique

4.3.1 Introduction

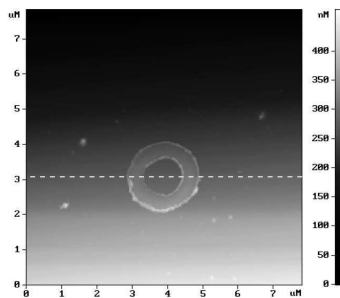
Cette technique est basé sur l'utilisation d'un faisceau d'électron pour briser les chaînes d'un polymère électrosensible. Ce processus a été mis en oeuvre au cours des années 1960 avec la découverte de la sensibilisation du polymère *Poly (methylmethacrylate)* **PMMA** aux électrons. Comme indiqué précédemment, l'intérêt est d'utiliser un faisceau d'électrons de longueur d'onde nanométrique, pour obtenir une résolution latérale maximale.

Pratiquement, ce processus est réalisé à partir du dépôt d'une couche mince de polymère **PMMA** sur un substrat. L'impression des motifs se fait généralement par deux méthodes, soit par projection, soit par écriture directe [139]. L'insolation par projection requiert l'utilisation d'un masque. Celui-ci est illuminé par un faisceau d'électrons parallèle adapté à la dimension du masque. L'écriture directe requière l'utilisation d'un microscope électronique à balayage ; piloté par ordinateur, il permet à la fois de focaliser le faisceau d'électrons, et de contrôler par imagerie la position latérale du foyer sur la résine. Cette méthode offre plus de souplesse dans la conception des motifs que la technique par masquage. La première méthode est dite parallèle, la seconde est séquentielle, elle sera retenue dans cette étude.

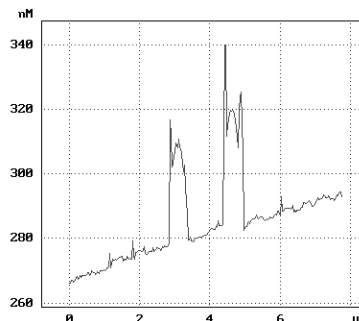
Une étape de développement fait suite à la phase d'insolation. Pour cela, la résine est soumise à une combinaison de solvants permettant de dissoudre les régions où les mailles du polymère ont été brisées par l'insolation (cas d'une résine positive) ou les régions non insolées (cas d'une résine négative). Pour des raisons de simplicité de réalisation des nano-antennes, nous avons opté ici pour l'emploi d'une résine **PMMA** positive. Une fois développée, la résine joue le rôle de masque pour réaliser la structure finale. Pour cela différentes techniques sont possibles : la gravure ionique réactive (**RIE**), la gravure réactive profonde (**DRIE**) et le dépôt de couches minces. Sans justifications précises a priori, nous avons opté pour le dépôt d'une couche mince métallique par les processus conventionnelles d'évaporation ou de pulvérisation. Le procédé se termine par une opération de lift-off afin de finaliser la réalisation des structures, par élimination des restes de résine sur l'échantillon ; seul le motif métallique directement en contact avec le substrat fournit la structure finale. Un schéma du processus est présenté sur la figure 4.2(a). Un résultat préliminaire de fabrication d'un anneau micrométrique est également reporté sur



(a) Schéma du processus lithographie électronique avec une résine positive.



(b) Image *AFM* (mode tapping) d'un anneau de diamètre interne de $1\ \mu\text{m}$ et de diamètre externe $2\ \mu\text{m}$ obtenu par lithographie électronique.



(c) Coupe de l'anneau suivant la ligne pointillée blanche de la figure (b).

FIG. 4.2 – Schéma et résultats du processus de lithographie électronique classique.

les figures 4.2(a,b).

4.3.2 Résines électrosensibles

Le procédé de lithographie électronique est le résultat de deux interactions complexes électron-résine et solvant-résine, successives dans le temps. Le choix de la résine est ici crucial dans la détermination des performances du processus. L'association de la résine à un solvant adapté définit en grande partie les paramètres tels que la sensibilité, le contraste, la rugosité de surface et la résolution.

Il s'avère que plus une résine est sensible aux rayonnements électroniques, moins elle est performante du point de vue de la résolution. Actuellement, plusieurs résines électrosensibles positives sont disponibles. Parmi les plus sensibles, on trouve le polymère *PolyButene-1-Sulfone* **PBS**, le copolymère de *trifluoroethyl α -chloroacrylate* et *tetrafluoropropyl α -chloroacrylate* **EBR-9**. Le copolymère de *chloromethacrylate* et *methylstyrene* **ZEP** présente quant à lui une plus faible sensibilité au bénéfice d'une meilleure résolution.

Le meilleur compromis sensibilité-résolution est obtenu pour le polymère *Poly (methylmethacrylate)* **PMMA**; c'est pour cette raison qu'il est une référence en lithographie électronique. A l'heure actuelle, la résolution ultime de 7 nm, associée au **PMMA** a été obtenue par Chen & al. [140]. Elle surpasse celle de 10 nm précédemment établie par Craighead & al. [141]. La modification de la technique de développement de la résine est à l'origine de cette amélioration. Le développement de la résine assisté par une agitation aux ultrasons permet ici d'éviter la redéposition du **PMMA** insolé sur les parois du motif et atténue fortement la rugosité des parois apparentes. Notons que la sensibilité du **PMMA** (liée à la résolution) dépend du poids moléculaire de la résine. Une résine avec un poids moléculaire élevé aura une meilleure résolution et une faible sensibilité, et vice versa. La résine **PMMA** est généralement commercialisée sur deux poids moléculaires, 450K et 950K.

Afin d'améliorer la résolution, il a été proposé de remplacer la couche unique de polymère par un système multi-couches de résines de différentes sensibilités. Par exemple, Hübner & al. [142] proposent un processus de lithographie à quatre couches, constitué d'une alternance de couches de résine **PMMA** et de couches de copolymère *polymethyl methacrylate-comethacrylic* **PMMA-MAA**. Ce dernier présente une sensibilité plus forte au rayonnement électronique que le polymère **PMMA**. Lorsque la technique de fabrication requière le dépôt d'une couche métallique sur la résine développée, cet arrangement de couches permet d'augmenter d'une part la résolution et d'autre part la directivité du dépôt métallique (voir figure 4.3). Mais l'augmentation de l'épaisseur de la couche totale ne se fait pas sans modification de la phase d'insolation. En effet, elle implique une augmentation de la vitesse des électrons au contact de la résine, ceci afin d'atténuer l'effet de diffusion dans les couches successives.

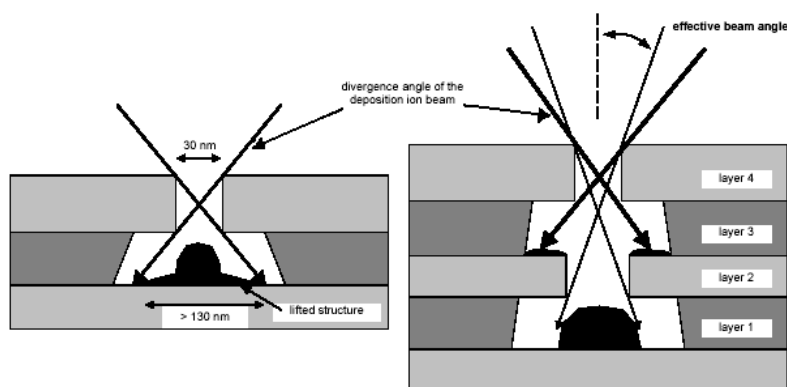


FIG. 4.3 – Schéma du processus à quatre couches proposé par Hübner & al. [142]

4.3.3 Préparation de l'échantillon

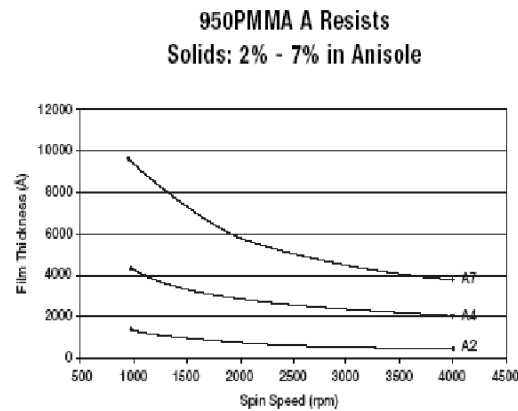
Dans le processus de fabrication mise en place dans ce travail, nous avons opté pour l'utilisation d'une couche unique de résine *PMMA 950K*. Cette composition chimique a été choisie pour son excellent compromis entre la résolution et la sensibilité vis à vis du rayonnement électronique. Généralement, la résine est dissoute dans un solvant tel que l'anisole ou le chlorobenzène. A partir de la courbe présentée sur la figure 4.4(a), on a choisi la dilution à 4 % dans l'anisole. Le dépôt de la solution ainsi obtenue est effectué par *spin coating* sur une plaque de verre *ITO*, en deux étapes : une première étape est réalisée avec une accélération de 200 *rpm* jusqu'à atteindre une vitesse de 5000 *rpm* (environ 25 s), ensuite cette vitesse est maintenue pendant 45 s. L'analyse d'un motif insolé et développé sur une couche type de *PMMA*, a été effectuée par microscopie *AFM* en mode tapping (voir figure 4.4) : elle permet de déterminer une épaisseur de couche d'environ 150 nm (Figure 4.4(c)).

Ensuite, l'échantillon est chauffé à 180 °C pendant plus d'une heure afin d'éliminer le solvant par évaporation. Pratiquement, une fine couche de chrome (~ 20 nm) est déposée par pulvérisation sur l'échantillon afin d'évacuer les charges au moment de l'insolation et ainsi faciliter la mise au point du faisceau d'électrons sur la couche de résine.

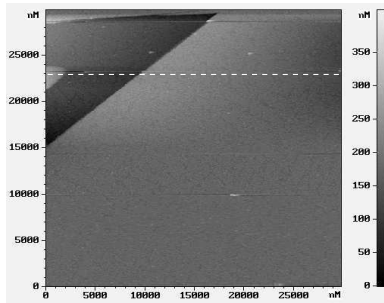
4.3.4 Insolation des motifs

L'insolation des motifs sur la résine est réalisée à l'aide d'un microscope à balayage électronique *LEICA S440 d'Orsay Physics* piloté par le logiciel *Elphy Quantum-Raith*. Un schéma du microscope électronique à balayage utilisé dans ce travail est représenté sur la figure 4.5.

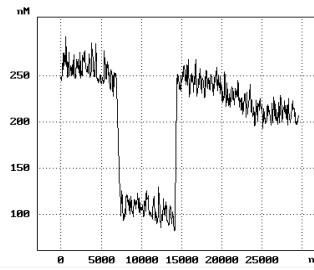
Comme nous l'avons précédemment mentionné, la résolution associée au processus de lithographie électronique est conditionnée par l'interaction entre le rayonnement électro-



(a) Épaisseur de la couche de *PMMA* en fonction de la vitesse de rotation, d'après la notice du fabricant.



(b) Image *AFM* (mode tapping) de la couche de *PMMA* après les étapes d'exposition et de développement.



(c) Section de l'image *AFM* suivant la ligne pointillée.

FIG. 4.4 – Caractéristiques de la couche de *PMMA* déposée par *spin coating*.

nique et la résine (phénomène de diffusion des électrons). Ainsi, la résolution dépend de trois paramètres critiques lors de la phase d'insolation. Non seulement elle est dictée par la dimension de la tache de focalisation d'après les lois classiques de la diffraction, mais elle dépend également de la quantité moyenne d'électrons incident par unité de surface (dose d'électrons D) ainsi que de la vitesse de pénétration des électrons dans le polymère. Nous allons discuter des effets de chacun des paramètres sur le processus de lithographie et la résolution.

Dimension de la tâche de focalisation

La largeur L de la tâche de focalisation est par définition directement liée à l'ouverture numérique (ON) du microscope et la longueur d'onde par la relation suivante, déduite des lois de la diffraction :

$$L = 0.61 * \lambda / ON \quad (4.1)$$

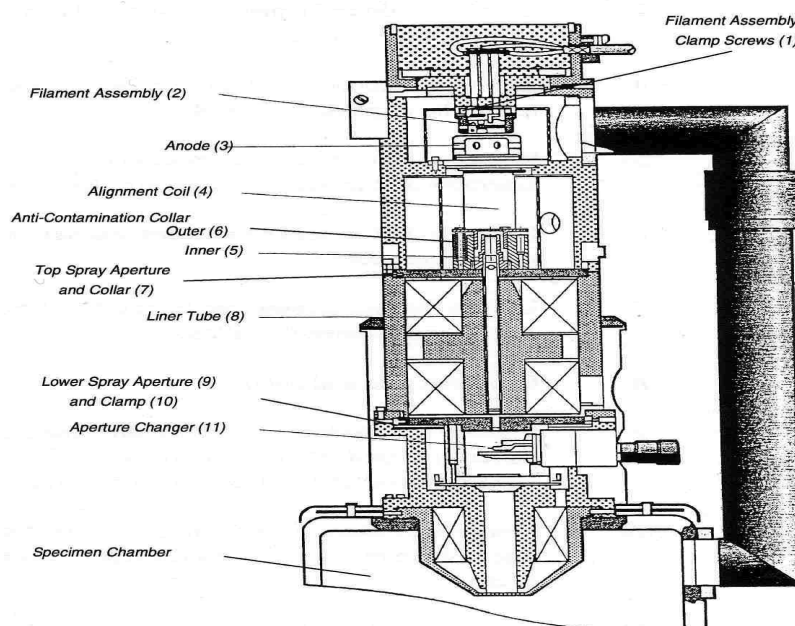


FIG. 4.5 – Schéma du microscope électronique MEB "Leica S440" de la société Orsay Physics.

En pratique, la dimension de la tâche dépend également d'une part de l'alignement des éléments de la colonne du microscope (lentilles magnétiques, diaphragmes, etc.), d'autre part de la distance séparant l'échantillon de l'objectif magnétique du microscope (distance de travail).

L'alignement de la colonne joue un rôle essentiel dans la correction des aberrations du microscope. Un système de focalisation comportant des aberrations voit chuter sa capacité à confiner le rayonnement dans un plan focal.

Plus la distance de travail est faible, plus ON peut atteindre une valeur importante (plus le cône de focalisation peut être ouvert) ; ainsi, d'après l'équation 4.1, la résolution potentielle augmente lorsque l'échantillon est proche de l'objectif du microscope. Cependant, on sait qu'un accroissement de la résolution s'accompagne d'une réduction de la profondeur de champ du microscope. Dans ces conditions, un compromis entre ces deux paramètres doit être trouvé en choisissant une distance de travail adaptée. D'après le constructeur, la distance optimale de travail est située entre 3 et 10 mm , pour un diamètre de diaphragme allant de 20 à 30 μm . Dans notre cas, l'échantillon a été placé à une distance de travail de 8 mm . Afin de pouvoir insoler la couche de résine sur une surface totale de $20 \times 20 \mu m^2$, le grossissement du microscope a été fixé à environ 6000.

Dose d'électrons

Ce paramètre définit la quantité moyenne d'électrons par unité de surface dans la zone de focalisation, sur la résine. La valeur de la dose est choisie en fonction de la sensibilité de la résine. Techniquement, la dose appliquée est le résultat de la sélection du meilleur compromis entre les trois paramètres suivants :

- le courant des électrons I_p , qui définit le flux d'électrons à travers la surface de la tâche de focalisation. Une valeur entre 10 et 20 pA est recommandée afin d'obtenir une résolution suffisante pour les applications en micro et nano-fabrication.
- l'aire élémentaire d'insolation (ΔA), elle même liée à l'échantillonnage spatial de la structure à insoler. Celui-ci doit être assez petit pour décrire correctement la géométrie de la structure. Dans notre cas, nous avons limité ΔA à des valeurs comprises entre 5×5 à $40 \times 40 \text{ nm}^2$.
- le temps d'exposition de la surface élémentaire (Δt). Il faut que Δt soit d'une part, suffisamment petit pour que le maillage spatial puisse être adaptable aux exigences de résolution, et d'autre part, suffisamment grand pour que le système de contrôle électronique puisse gérer convenablement la procédure d'insolation.

Ces paramètres permettent de définir la dose d'électrons (D) par la relation 4.2 :

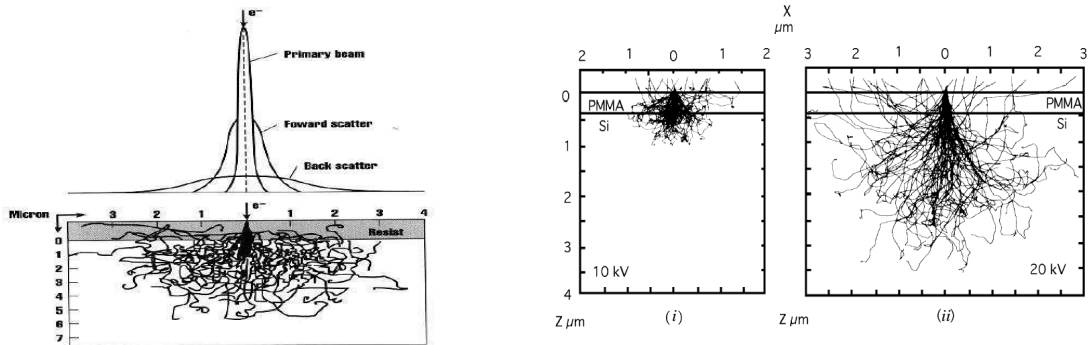
$$D = I_p \frac{\Delta t}{\Delta A} . \quad (4.2)$$

Pour la résine *PMMA 950K*, la valeur de la dose D peut varier de 50 à 500 $\mu C/cm^2$ pour insoler une surface et de 0,5 à 10 nC/cm pour insoler une ligne. Une analyse du *PMMA* réalisée par Haller [143] montre qu'une surexposition de la résine (impliquant une valeur trop importante de la dose) a pour effet de modifier les propriétés chimiques de la résine insolée s'accompagnant d'une adhésion irréversible sur le substrat. Ainsi, les régions surexposées ne seront pas éliminées ni par le développeur, ni par l'acétone (cf. procédures de développement et de lift-off, sec 4.3.5).

Vitesse de pénétration des électrons dans la résine

Le phénomène de diffusion des électrons dans la résine est défini par la vitesse des électrons focalisés. La figure 4.6(a) représente une simulation par la méthode de Monte-Carlo des trajectoires de 100 électrons pénétrant la résine, et de la distribution spatiale des électrons à l'intérieur et au voisinage de la zone d'exposition. On voit ici clairement que la résolution va être affectée par des effets de diffusion et de rétro-diffusion des électrons. La figure 4.6(b) montre l'évolution de la diffusion en fonction de la tension d'accéléra-

tion (vitesse de pénétration des électrons). Une faible tension (environ 10 keV) a pour conséquence une diffusion majeure des électrons dans la couche de *PMMA*. Lorsque l'on augmente la tension d'accélération, le rayonnement électronique devient plus directif dans la couche de résine. Le phénomène de diffusion est progressivement transféré dans le substrat (figure 4.6(b)(ii)). Par conséquent, une augmentation de la vitesse de pénétration des électrons a pour effet d'améliorer la résolution. Pour confirmer cette analyse on peut citer les travaux d'Olkhovets & *al.* [144] portant sur le lien entre la tension appliquée et la résolution. Il a été montré que l'épaisseur de la couche doit être adaptée à la tension d'accélération des électrons. Plus la tension est faible, plus la couche de résine doit être mince. Une résolution meilleure que 60 nm est obtenue avec une tension d'accélération de seulement 1 keV avec une épaisseur de résine d'environ 50 nm . Dans notre équipement, la tension d'accélération maximale est limitée à 30 keV , ce qui pour une épaisseur minimale de résine déposée d'environ 150 nm constitue une réelle limitation dans nos possibilités.



(a) Distribution d'énergie de l'interaction entre les électrons et la matière et distribution des trajets parcourus par 100 électrons dans la résine.

(b) Simulation de Monte-Carlo de la dispersion des électrons dans une résine déposée sur un substrat de silicium à i) 10 keV et ii) 20 keV .

FIG. 4.6 – Effets de l'interaction électron-matière (d'après la Ref. [145]).

Comme indiqué sur la figure 4.6(a), lorsque le faisceau d'électron traverse le polymère jusqu'au substrat, les électrons vont subir différents processus de diffusion. Certains électrons subissent une diffusion directe, d'autres subissent une retro-diffusion loin de la région désirée, d'autres encore transfèrent leur énergie cinétique sur des électrons du matériau, qui à leur tour vont diffuser (électrons secondaires).

L'association de ces trois processus conduit à opérer sur une zone plus large que la zone désirée, par augmentation la dose d'électrons et dépassement du seuil d'insolation sur des régions non désirées (voir figure 4.7). Ainsi la zone effective insolée est plus large que la région initialement déterminée par la taille du faisceau focalisé. Ce phénomène, appelé *effet de proximité*, est la conséquence d'une insolation indirecte, qui dégrade la résolution.

Plusieurs approches ont été développées pour diminuer l'effet de proximité [146, 147, 139]. Ces approches sont basées sur l'utilisation, soit d'une couche mince de résine dont l'épaisseur est de l'ordre de la largeur des motifs à insoler, soit d'une couche métallique mince entre la résine et le substrat qui vient stopper les électrons secondaires et les élec-

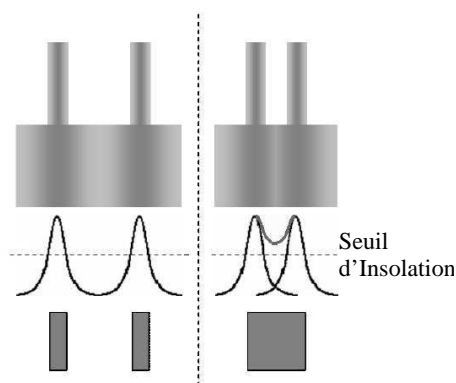


FIG. 4.7 – Effet de proximité

trons rétro-diffusés. On peut également agir sur le contrôle de la dose utilisée. Pour un motif uniforme, la dose est simplement ajustée jusqu'à obtenir la dimension désirée, en revanche, si le motif est complexe, une modulation de la dose doit être appliquée.

Dans notre cas, face aux difficultés techniques nous avons expérimenté deux méthodes d'insolation pour la fabrication d'anneaux de taille sub-micrométriques :

- La première méthode consiste à choisir une valeur fixe de la dose d'électrons comprises entre $150 \mu C/cm^2$ et $180 \mu C/cm^2$, et d'effectuer l'insolation sur un seul balayage.
- La seconde méthode met en oeuvre une phase d'insolation comprenant plusieurs balayages successifs à dose constante. La procédure est telle que le diamètre moyen de la couronne d'insolation reste fixe à chaque passage, alors que sa largeur de la couronne d'insolation est réduite de moitié (voir figure 4.8). Ceci a pour but de générer un gradient d'insolation allant du rayon moyen aux bords intérieurs et extérieurs de la couronne. La largeur de la couronne d'insolation est réduite sur les deux derniers balayages afin que le phénomène de diffusion des électrons dans la résine n'élargisse pas le motif désiré, par dépassement du seuil d'insolation. Comme nous le montrerons dans la suite, cette technique de multiples passages permettra de minimiser les effets d'instabilité de commande du faisceau électronique qui engendrent des défauts dans la définition des bords du motif. Le nombre de passages maximal est limité par les exigences liées à la recherche du compromis entre les paramètres Δt et ΔA de l'équation 4.2. Dans notre cas, le nombre maximal est estimé à quatre.

4.3.5 Développement et lift-off

Suite à l'insolation, la couche de chrome recouvrant initialement la couche de résine est éliminée par attaque chimique. On procède ensuite à trois étapes successives : le déve-

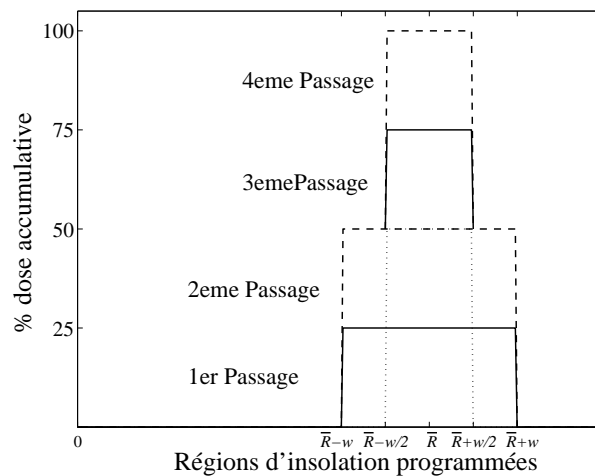


FIG. 4.8 – Caractéristiques des zones programmées pour l'application de la dose de chaque passage par rapport au centre de la couronne circulaire. \bar{R} est le rayon moyen et w est la demi largeur de la couronne insolée.

loppement de la résine insolée, la métallisation de la structure obtenue et enfin l'opération de lift-off.

Développement : l'aptitude du solvant à discriminer les régions exposées des zones non exposées est un des nombreux paramètres déterminant la résolution limite du processus de lithographie. Une telle aptitude du produit développant est fonction de ses propriétés de contraste et de sensibilité. Yasin & *al.* [148] ont réalisé une étude sur deux solutions chimiques. La première solution est constituée d'un mélange de *Methyl IsoButyl Keytone MIBK* et d'*Isopropanol IPA*, suivant un rapport 3 : 1 à 25 °C. Cette configuration offre un fort contraste et une haute résolution au procédé de développement. La seconde solution est un mélange d'*IPA* et d'eau, selon un rapport de 3 : 7. Elle a été présentée comme étant la plus apte à obtenir une haute sensibilité et un fort contraste.

Il est communément établi qu'une amélioration de la sensibilité s'accompagne d'une perte de contraste. Par exemple, si l'on change le rapport du mélange *MIBK* : *IPA* de 1 : 3 à 1 : 1, on double la sensibilité au prix d'une chute de moitié du contraste.

Dans le processus de fabrication que nous avons adopté pour ce travail, la résine est développée durant 15 s dans une solution de *MIBK* : *IPA* 1 : 3, le développement étant assisté par agitation aux ultrasons. Afin d'éliminer les résidus du développeur et de la résine, un rinçage final est réalisé dans l'*IPA*, suivi d'un chauffage de l'échantillon à 100 °C afin d'évaporer l'*IPA*.

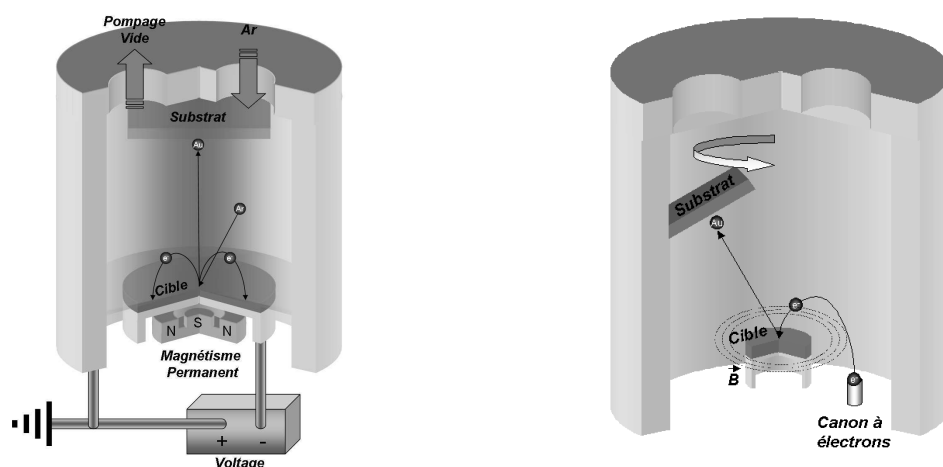
Métallisation : La surface de résine à l'issue de la phase de développement est recouverte d'une couche d'or, pouvant être déposée par des techniques de *pulvérisation* ou d'*évaporation*. Ces deux méthodes sont basées sur le dépôt d'un matériau provenant d'une cible. Le décrochement de matière est réalisé dans le premier cas par bombardement par des ions Ar^+ , et dans le second cas par un fort échauffement.

Le principe du dépôt de couches minces par *pulvérisation* est représenté sur la figure 4.9(a). Une chambre préalablement mise sous vide est remplie d'argon jusqu'à atteindre une pression d'environ 3×10^{-2} Torr. La mise sous tension de la cible permet de générer un plasma ionique à partir du gaz et simultanément d'accélérer les ions Ar^+ en direction de la cible. Le matériau de la cible arraché par les impacts se dépose sur le substrat. Des électrons secondaires, rayonnés suite aux impacts ioniques, vont participer à l'ionisation du gaz. Afin de tirer profit au maximum de l'ionisation du gaz par les électrons secondaires, un système annulaire d'aimantation est placé sous la cible. Ce système produit un champ magnétique permettant de capturer les électrons secondaires et de les faire circuler à la surface de la cible. Ceci va augmenter fortement la probabilité d'ionisation des atomes d'argon au voisinage de la cible. Par conséquent, l'allumage du plasma est possible avec des pressions plus basses que dans le processus classique. Ce procédé, appelé *pulvérisation magnétique*, permet de diminuer les collisions des particules décrochées de la cible avec les particules de gaz, le long de leurs trajectoires vers le substrat. Ainsi, le matériau entre en contact avec le substrat avec une directivité et une énergie cinétique plus importantes que dans le cas classique, conduisant à une amélioration sensible de la qualité du dépôt.

Le principe du dépôt de couches minces par évaporation est reporté sur la figure 4.9(b). Dans une chambre préalablement mise sous vide, une cible est chauffée par une source suffisamment puissante afin de réaliser une évaporation partielle du matériau. Cet échauffement peut être assisté par un faisceau d'électron de forte intensité. Les particules métalliques évaporées se propagent directement de la cible jusqu'à l'échantillon, créant ainsi une couche mince sur le substrat. Dans le processus classique, on travaille à très basse pression (5×10^{-7} Torr) afin de minimiser la probabilité de chocs avec les molécules restant présentes dans la chambre.

La centrale de technologie *MIMENTO* de l'Institut *FEMTO-ST* dispose d'un système de pulvérisation magnétique (*Alcatel*). Récemment, une machine de dépôt par évaporation e-beam (*Alliance Concept*) a été acquise par la centrale. Grâce à la grande directivité du dépôt réalisé par évaporation e-beam, et au contrôle de la vitesse des dépôts, la couche mince obtenue présente un meilleur état de surface que celui obtenu par pulvérisation. On choisira donc cette méthode pour réaliser les opérations de métallisation.

Lift-off : A la suite de la métallisation du motif de résine, l'échantillon est plongé dans l'acétone afin de dissoudre la résine qui n'a pas été insolée. Pour une amélioration de la mouillabilité, l'acétone est chauffée à $50^\circ C$. Ceci a pour effet de laisser les structures



(a) Dispositif de dépôt de couches minces par pulvérisation magnétique.

(b) Dispositif de dépôt de couches minces par évaporation *e-beam*.

FIG. 4.9 – Deux méthodes de dépôt de couches minces.

métalliques (nano-anneaux) en contact direct avec le substrat, les autres étant dégagées suite à la dissolution de la résine.

4.3.6 Résultats

Cette partie expose les résultats obtenus par les techniques d'insolation à un seul et à quatre balayages (section 4.3.4). Quelle que soit la méthode d'insolation, les procédés de développement, de métallisation et de lift-off employées sont identiques.

Les structures annulaires résultant de l'insolation à un passage sont rapportées sur les figures 4.2(b) et 4.10(a). La figure 4.2(b) présente une image topographique *AFM* d'un des premiers anneaux fabriqués. La figure 4.10(a) reporte quant à elle une image *MEB* d'une matrice d'anneaux obtenue lors de la maîtrise du procédé. Une image agrandie d'un des anneaux de la matrice est présentée sous forme d'un encadré dans la figure. Pour cela, l'anneau a été imagé par le microscope électronique en augmentant le grossissement et l'ouverture numérique de l'objectif.

Les structures annulaires résultant de l'insolation à quatre passages sont montrées sur la figure 4.10(b). Comme pour la figure 4.10(a), un agrandissement d'un des anneaux de la matrice est donné en encadré dans la figure.

Notons que les deux anneaux dans les encadrés de la figure 4.10 ont été réalisés avec les mêmes paramètres géométriques d'insolation. Le rayon moyen a été fixé pour les deux structures à 375 nm avec une largeur de couronne de 125 nm . A partir de ces paramètres,

les rayons interne et externe sont *a priori* estimés à 312 nm et 437 nm, respectivement.

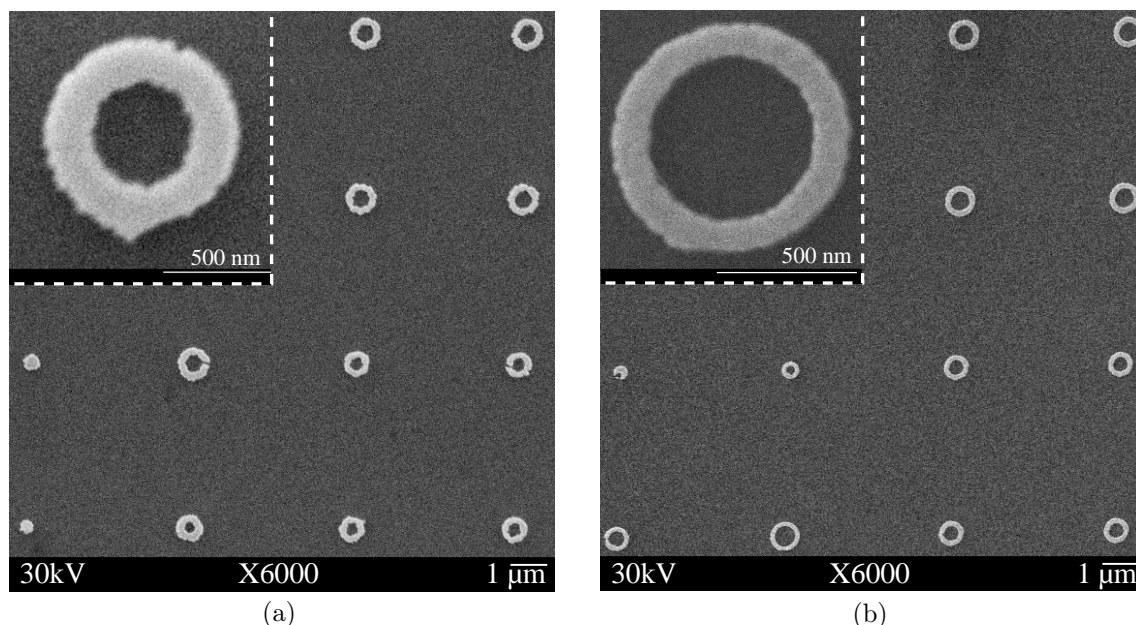


FIG. 4.10 – Image *MEB* des anneaux obtenus en réalisant un seul passage en (a) et quatre passages en (b). Dans le coin supérieur gauche le grossissement d'un anneau.

Une analyse quantitative des caractéristiques géométriques des anneaux fabriqués par les deux méthodes d'insolation a été effectuée à partir des images de la figure 4.11. Pour ce faire, les images agrandies de la figure 4.10 ont été traitées par une procédure développée avec Matlab ; la géométrie de limites internes et externes des anneaux ont été déterminés précisément grâce à la fonction *edge* du logiciel (figures 4.11 (a,b)). Les deux géométries ainsi obtenues ont été approximées par des formes elliptiques (courbes en tirets). Enfin, les variations des rayons interne et externe en fonction de l'angle azimuthal (coordonnées polaires) sont données sur les figures 4.11 (c et d). Ces figures reportent également les courbes caractéristiques des ellipses d'approximation des structures (courbes en pointillés) ainsi que les rayons définissant la couronne théorique supposée être fabriquée compte-tenu des paramètres géométriques d'insolation (courbes en pointillés).

Trois points structurent cette analyse.

Premièrement, les figures 4.11 (c et d) indiquent que la structure obtenue en utilisant une insolation à quatre passages est plus proche de la structure déterminée *a priori* que celle réalisée avec une insolation à un seul passage. En effet, l'écart moyen entre les rayons internes supposés et réalisés est de 19 nm pour le procédé à quatre passages et de 68 nm pour le procédé à un passage. L'écart moyen entre les rayons externes est quant à lui de 12 nm pour le processus à quatre passages et de 26 nm pour le processus à un seul passage. Un tel écart s'explique par le phénomène de diffusion électronique dans la résine plus important avec la méthode d'insolation à un seul passage.

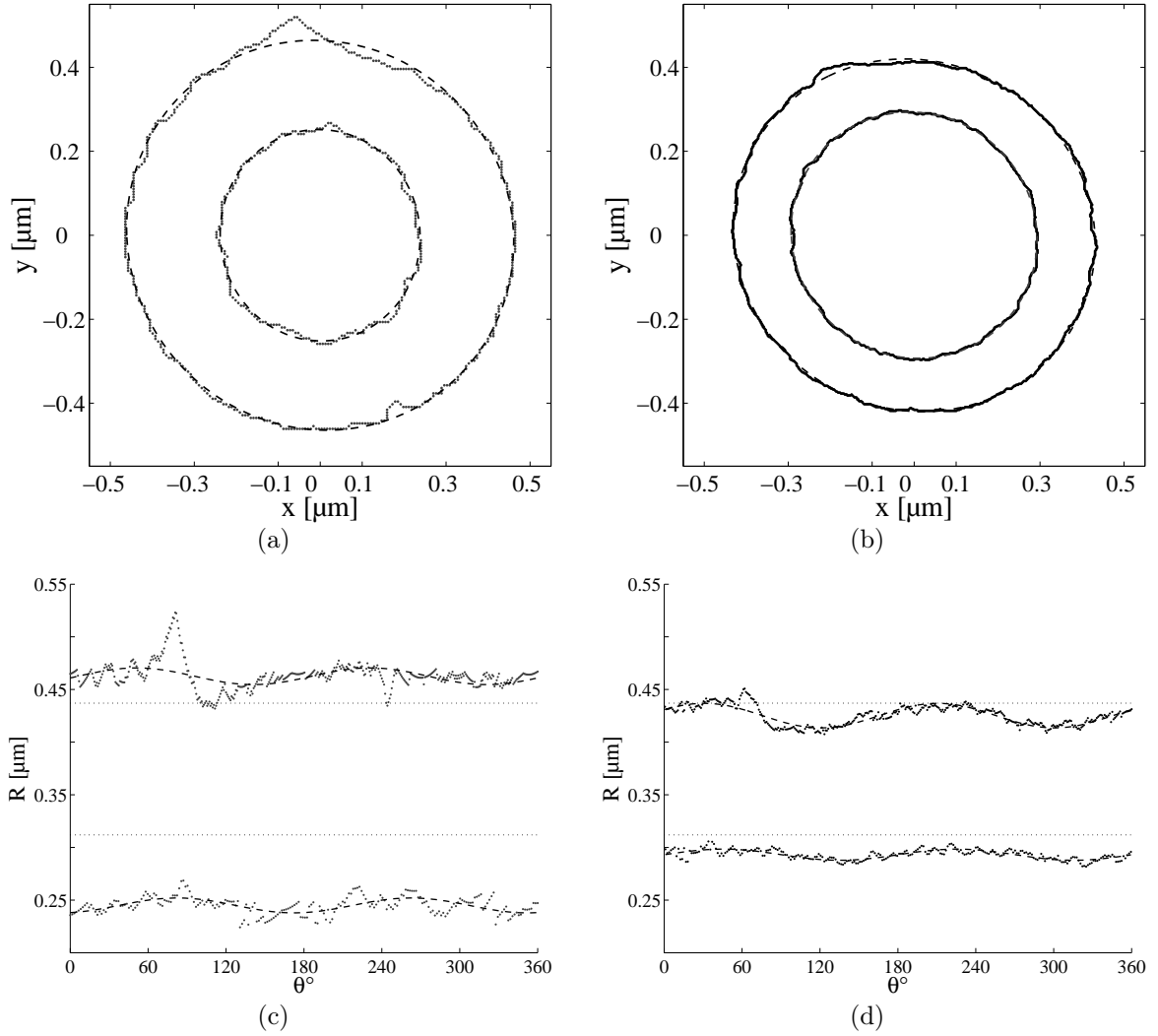


FIG. 4.11 – (a,b) superposition des bords calculés à partir des images *MEB* précédentes (r_i) et des ellipses adaptées (R_i). (c,d) valeurs de r_i et R_i pour chacun des points par échantillonnage angulaire. Pour 1 passage en (a,c) et 4 passages en (b,d).

On remarque ensuite, à partir de la figure 4.11, que les anneaux fabriqués présentent une légère ellipticité. Les courbes d'approximation (tirets) des figures 4.11 (c et d) présentent une légère ondulation en fonction de l'angle azimuthal. Cette caractéristique peut s'expliquer par un défaut de parallélisme entre le plan moyen de l'échantillon et le plan de focalisation du microscope lors de la phase d'insolation, ou lors de l'acquisition de l'image. Cette ellipticité est limitée à moins de 1% quelque soit la technique d'insolation mise en œuvre. Dans ces conditions, on considère que cet écart est suffisamment faible pour être négligé.

Enfin, la figure 4.10(a) met en évidence une irrégularité prononcée des bords de l'anneau réalisé par un seul passage. On explique ce défaut aléatoire par un bruit provenant du contrôle du balayage du faisceau, au moment de l'insolation de la résine. On remarque

sur la figure 4.10(b) que cette irrégularité est fortement diminuée avec la technique d'insolation à quatre passages. Ceci s'explique par le caractère aléatoire du bruit de contrôle de balayage du faisceau. La succession des passages agit ici comme un filtre passe-bas dans la définition des bords de l'anneau, conduisant à des anneaux lissés. Le tableau 4.3.6) reporte d'une part la valeur maximale de l'écart σ_i entre les parois de l'anneau réalisé et de son approximation par une ellipse, et d'autre part, la valeur moyenne de cet écart, pour les deux techniques d'insolation.

Erreur	$\sigma_{int.}/1$ pas.	$\sigma_{ext.}/1$ pas.	$\sigma_{int.}/4$ pas.	$\sigma_{ext.}/4$ pas.
$\max(\sigma_i)$	18 nm	57 nm	9 nm	19 nm
$< \sigma_i >$	5.5 nm	7.7 nm	2.4 nm	3.5 nm

TAB. 4.1 – Écart σ_i , entre l'anneau réalisé et son approximation par une ellipse (i signifiant interne ou externe).

On s'aperçoit sur cet exemple que les valeurs maximales de σ_{int} et σ_{ext} sont respectivement 2 et 3 fois plus faibles avec l'insolation à quatre passages. De plus les valeurs moyennes de σ_{int} et de σ_{ext} , définissant la rugosité moyenne sur les parois interne et externe des anneaux, sont respectivement 2.3 et 2.2 fois plus petites dans le cas de l'insolation à quatre passages. Ces résultats confirment de manière quantitative le dernier point de cette analyse.

Nous pouvons donc conclure que l'insolation de la résine par quatre balayages successifs de sa surface donne de meilleurs résultats que la méthode conventionnelle à balayage unique. En effet, elle réduit considérablement d'une part l'écart dimensionnelle entre la zone insolée et la structure métallique finale, et d'autre part, la rugosité des parois des motifs annulaires. Cette conclusion, qui se limite ici à notre réalisation avec les moyens technologiques de la central *MIMENTO*, peut aisément être élargie aux divers dispositifs plus ou moins résolvants de la lithographie électronique à balayage, quelle que soit la structure envisagée.

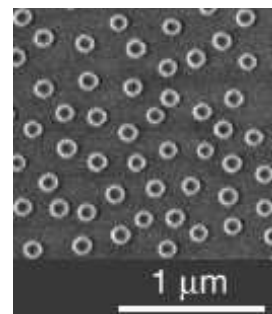
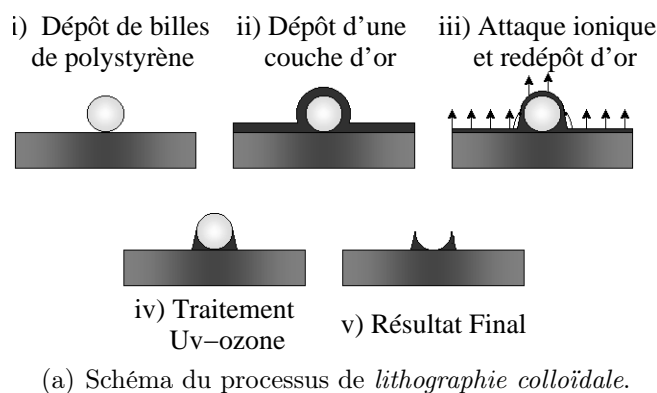
On notera également d'après la figure 4.10(b) que le plus petit diamètre externe au-delà duquel un anneau est réalisable (par l'insolation à quatre passages) est d'environ 0.7 μm . En dessous de cette valeur, la diffusion électronique dans le polymère conduit à la formation d'un disque avec perte de la partie centrale. Cette conclusion prend évidemment en compte les performances du microscope électronique employé pour cette étude (focalisation, stabilité du positionnement du faisceau d'électrons, tension d'accélération, etc.).

4.4 Solution alternative : lithographie électronique et processus de redéposition

4.4.1 Lithographie colloïdale

Aizpurua & *al.* [132] ont mis en œuvre une technique de lithographie colloïdale pour la fabrication d'anneaux de quelques dizaines de nanomètres de diamètre. Le processus de fabrication est décrit sur la figure 4.12.

Des billes de polystyrène sont déposées par assemblage électro-statique sur une plaque de verre. Une couche mince d'or est ensuite déposée par évaporation, puis une attaque par des ions Ar^+ élimine la couche d'or. Pendant la phase d'élimination de la couche d'or par attaque ionique, une partie du métal se redépote sur la région localisée entre la bille et le substrat. Les billes sont ensuite enlevées par un traitement *UV*-ozone suivi d'un rinçage à l'eau. Finalement, seul l'or redéposé autour des billes reste présent sur le substrat sous la forme d'anneaux (voir figure 4.12(b)). L'avantage de cette technique est de permettre la fabrication d'anneaux de taille nanométrique avec une bonne répétabilité, de forme circulaire quasi parfaite. Le principal désavantage de cette technique est le non contrôle du positionnement spatial des billes sur le substrat et donc des anneaux.



(b) Anneaux obtenus par Aizpurua & *al.* [132].

FIG. 4.12 – Fabrication d'anneaux d'or par *lithographie colloïdale* avec redéposition.

4.4.2 Lithographie électronique et attaque argon

Afin de surmonter les problèmes de résolution dus à la diffusion en lithographie électronique (section 4.3), nous avons développé une technique originale s'inspirant du principe de la lithographie colloïdale (section 4.4.1). L'idée est de déposer, par le biais d'une attaque ionique, une fine bande métallique sur les bords d'une structure, *a priori* quelconque, initialement inscrite dans une couche de résine par lithographie électronique. La figure 4.13 présente un résultat significatif sur un exemple de fabrication réalisé dans le cadre de ce travail.

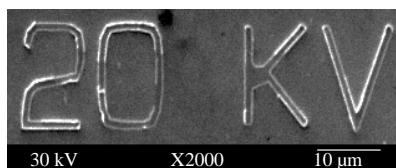


FIG. 4.13 – Image *MEB* d'un exemple de fabrication par la technique mise en oeuvre dans ce travail

Dans notre cas, la structure générée par lithographie électronique est un disque et non plus une couronne circulaire comme dans la partie précédente. Ici, la largeur de la couronne n'est plus limitée par la résolution du processus de lithographie électronique (diffusion électronique dans la résine, etc.). Ainsi, la fabrication d'anneaux plus petits et plus fins peut être envisagée. Suivant la nature positive ou négative de la résine employée, l'insolation d'un disque fournit soit un creux circulaire soit un cylindre en polymère. Nous avons expérimenté les deux solutions, les résines positive et négative utilisées sont respectivement le *PMMA 950K* et le *SALG01* ; il s'avère que les résultats sont plus satisfaisants avec la résine positive. Les étapes de fabrication avec une telle résine sont présentées sur la figure 4.14.

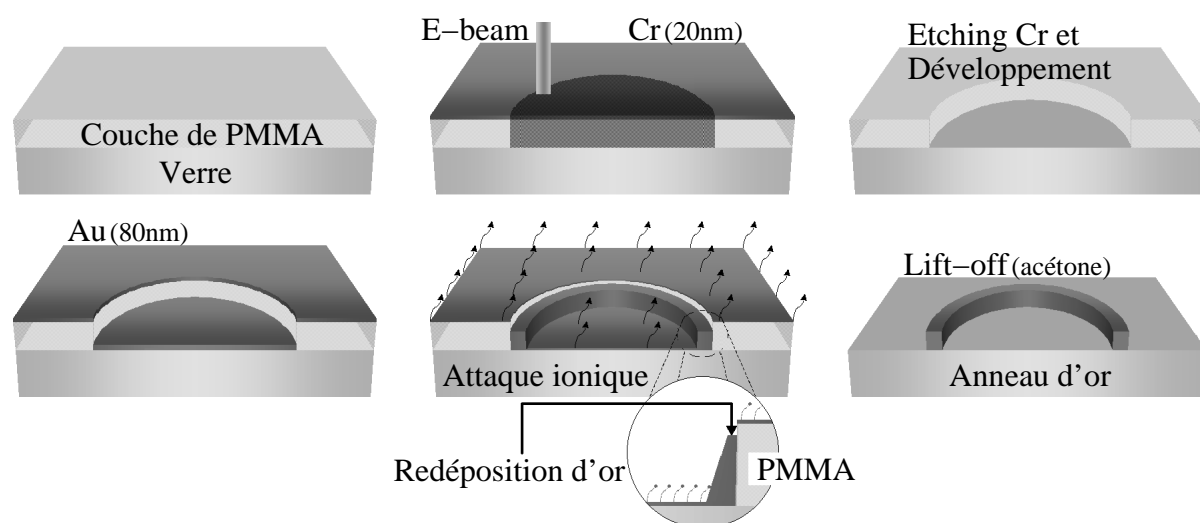


FIG. 4.14 – Schéma du processus proposé

Le processus développé ici reprend le schéma de fabrication mis en place dans la section 4.3 avec l'ajout d'une phase supplémentaire d'attaque ionique argon avant l'étape finale du lift-off. Comme dans la lithographie colloïdale, les ions Ar^+ éliminent la couche d'or et simultanément une redéposition des particules du métal a lieu sur les parois verticales de la couche de *PMMA*. Rappelons que le motif insolé n'est plus un anneau mais un disque, plus simple à réaliser. Dans ce cas, le diamètre externe de l'anneau est fixé par la taille du creux réalisé dans la couche de polymère, tandis que le diamètre interne et la hauteur de l'anneau dépendent de l'épaisseur initial de la couche d'or et donc de la durée

de la phase d'attaque ionique.

Sur la figure 4.15 sont présentés les anneaux réalisés par cette technique. L'image *MEB* de la figure 4.15(a) montre une matrice ordonnée périodique d'anneaux ainsi fabriqués. Un zoom réalisé sur l'anneau central de la matrice est montré sur la figure 4.15(b). Les figures 4.15(c,d) représentent une image de cet anneau lorsque celui-ci est incliné avec des angles de 10° et de 30° , respectivement. L'anneau en question a un diamètre externe de 300 nm et une épaisseur d'environ 50 nm . La figure 4.15(d) permet d'estimer la hauteur à environ 50 nm . Cette méthode montre la possibilité de créer des structures cylindriques de quelques dizaines de nanomètres d'épaisseur.

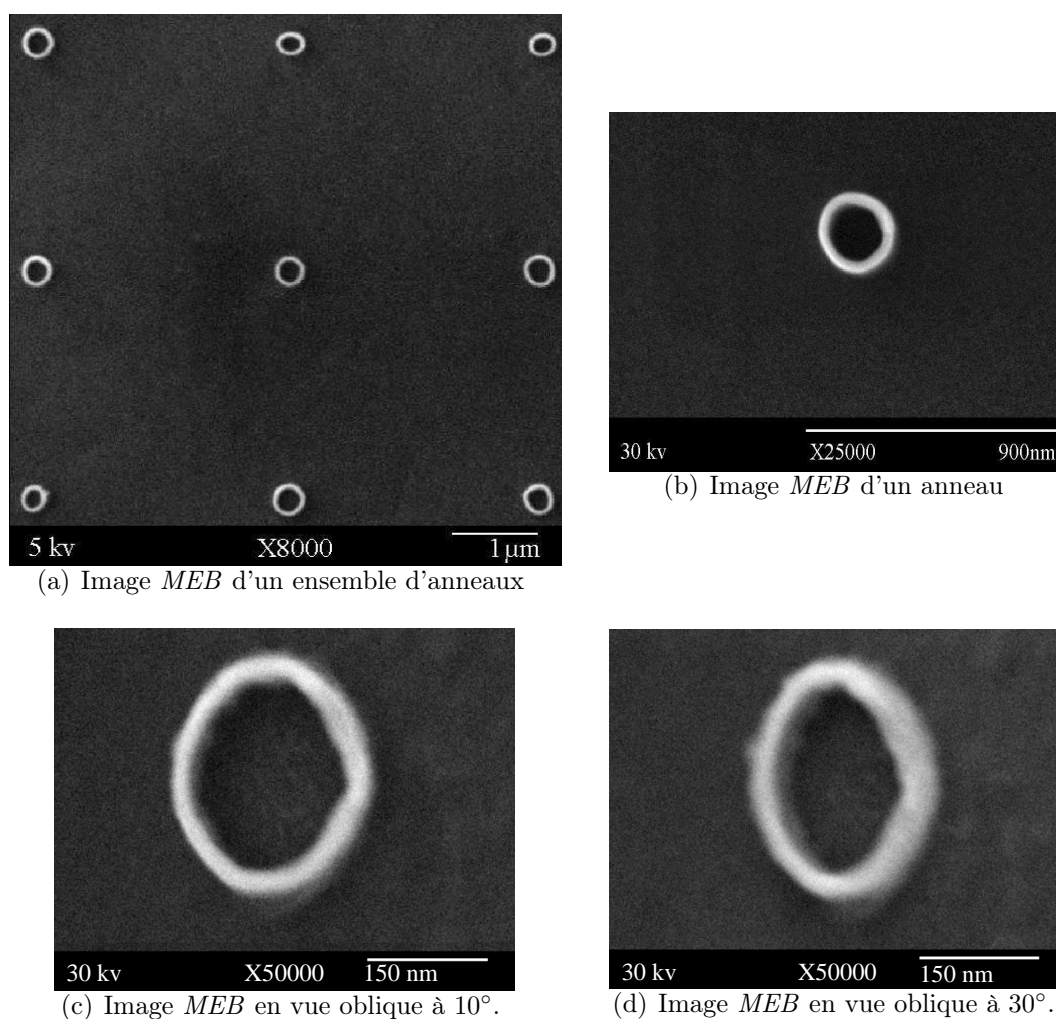


FIG. 4.15 – Images *MEB* d'anneaux obtenus par lithographie électronique et attaque ionique

La technique mise en place ici à l'avantage, par rapport à la lithographie colloïdale, de permettre la réalisation d'un anneau isolé ou d'ensembles organisés d'anneaux. Elle permet également de franchir aisément la limite en résolution imposée par le microscope électronique. De plus, si l'on compare les résultats de la figure 4.15 à ceux présentés sur

la figure 4.10, la rugosité des parois des anneaux semble beaucoup plus faible avec cette dernière méthode qu'avec la technique conventionnelle par lithographie électronique. En revanche, on remarque qu'il est plus difficile de maîtriser la forme circulaire (circularité) de la couronne et de contrôler l'épaisseur des anneaux. Aussi, l'usinage d'une nano-antenne par cette technique, à l'extrémité d'une sonde champ proche peut être remise en question.

4.5 Usinage par *FIB*

L'usinage par *FIB* est la technique la plus directe pour générer des échantillons nanostructurés. Son principe est exposé sur la figure 4.16(a). Les motifs souhaités sont gravés directement sur la couche métallique préalablement déposée sur un substrat. Pour ce faire, l'échantillon est exposé à un faisceau focalisé d'ions Ga^+ . Le bombardement de la surface par ces ions produit un transfert de moment cinétique aux atomes de la surface de l'échantillon exposée, lesquels sont arrachés sous forme d'atomes neutres ou ionisés. Dans ce cas, le dépôt d'une couche de résine sensible et les processus de développement et de lift-off sont éliminés, allégeant ainsi la procédure de fabrication et évitant les limitations propres à ces étapes.

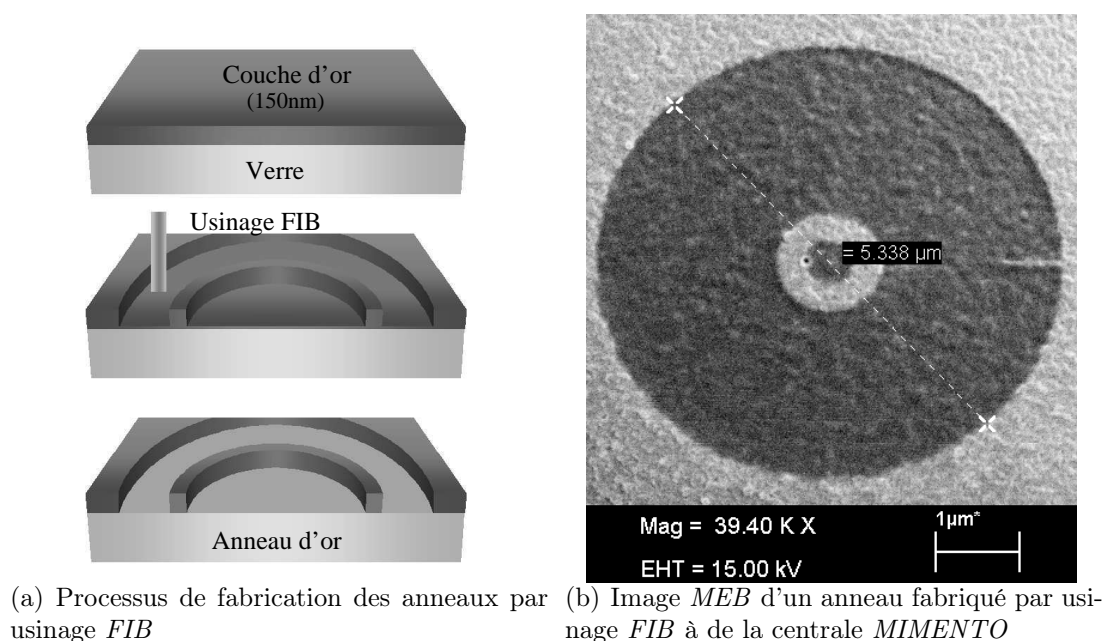


FIG. 4.16 – Principe et exemple d'usinage d'un anneau par *FIB*

Les problèmes de diffusion et d'effet de proximité, propres à la lithographie e-beam, sont fortement amoindris. Ceci s'explique d'une part grâce à la faible longueur d'onde associée au rayonnement ionique agissant directement sur la couche métallique et d'autre part sur la grande énergie cinétique des ions. Cependant, la lithographie par *FIB* a ses propres problèmes tels qu'une profondeur de pénétration limitée dans l'échantillon, des

risques de dommages du substrat par un usinage excessif de la couche métallique, une faible vitesse de gravure et un redépôt du matériau arraché. Ces problèmes peuvent être minimisés en développant un usinage assisté par un gaz réactif. La présence de ce gaz au voisinage de la région de travail produit une réaction plus complexe qui permet d'augmenter la vitesse de gravure et de diminuer la redéposition du matériau sur l'échantillon. Dans le même contexte, on peut choisir un gaz réactif contenant un composé spécifique permettant de réaliser un dépôt métallique sur la substrat. Dans ce cas, il est nécessaire de diminuer l'énergie du faisceau afin de ne pas graver simultanément le métal déposé. Le choix des paramètres est plus délicat dans ce dernier cas ; une analyse plus approfondie de la nano-fabrication par usinage *FIB* est présentée par Gamo [149] et Gierak & *al.* [150].

Ainsi, deux processus de fabrication d'anneaux sont possibles par usinage *FIB* au sein de la centrale *MIMENTO* : la gravure d'une couche métallique ou le dépôt de métal sur le substrat. Dans ce travail, nous avons opté pour la fabrication d'un anneau par usinage d'une couche métallique (figure 4.16(b)). La couronne circulaire est caractérisée par un diamètre externe de $1\ \mu m$ et un diamètre interne de $0.4\ \mu m$. Elle a été usinée en dégageant une zone circulaire d'environ $5,3\ \mu m$ sur une couche d'or de $80\ nm$ d'épaisseur. La zone dégagée est considérée suffisamment grande pour que l'anneau et la couche métallique non usinée soient optiquement découplés.

On s'aperçoit ici que l'usinage *FIB* peut offrir un meilleur contrôle de la forme géométrique de l'anneau que les techniques de fabrication utilisant la lithographie électronique. De plus, des réalisations plus récentes d'antennes annulaires au sein de la centrale *MIMENTO* montrent que la rugosité des parois délimitant les structures est bien inférieure à celle observée dans le cas des techniques lithographiques. Notons que la gravure par *FIB* a permis de réaliser des anneaux à l'extrémité des sondes locales pour la microscopie en champ proche.

4.6 Conclusion

Nous avons montré dans ce dernier chapitre que la réalisation d'anneaux de quelques centaines de nanomètres de diamètre est possible. A cette fin, trois procédés de fabrication ont été développés au sein de la centrale *MIMENTO*. Ceci nous a permis de mener une étude comparative de ces techniques à travers les résultats obtenus. Deux processus sont basés sur la lithographie électronique, tandis que le troisième concerne l'usinage par *FIB*.

Pour des raisons de simplicité, de précision, de résolution et de capacité à la fabrication d'une structure complexe à l'extrémité d'une sonde locale, l'emploi de l'usinage par *FIB* se présente comme la technique la plus favorable. En dépit de ses avantages, cette technologie n'a été que faiblement exploitée au cours de ce travail : ceci s'explique par la persistance de problèmes techniques de l'appareillage *FIB* lors du déroulement de cette étude, problèmes résolus depuis peu. C'est pour cette raison que les études concernant la réalisation par

lithographie électronique sont les plus approfondies.

Pratiquement, la résolution disponible par lithographie électronique a été limitée pour une bonne part par la tension d'accélération des électrons du microscope. En effet pour des dimensions finales de quelques nanomètres il faut un faisceau électronique généré par une tension d'environ 100 *keV*. Dans notre cas, le microscope électronique présente une tension maximale de 30 *keV*. A cela vient s'ajouter une perturbation du microscope par les instruments voisins pouvant altérer la précision de contrôle du faisceau électronique. Dans ces conditions, un nombre important d'essais ont été réalisés au niveau de paramètres de balayage et de dosage afin de trouver les meilleures conditions d'insolation.

La solution alternative et originale que nous proposons, permet de surmonter les problèmes de résolution inhérents au procédé classique de fabrication par lithographie e-beam. Les résultats obtenus sont satisfaisants vis-à-vis des conditions et performances du *MEB*. Nous avons en effet fabriqué des anneaux mésoscopiques d'épaisseur et de hauteur d'environ 50 *nm* et de diamètre externe 300 *nm*.

Enfin, nous remarquons que cette méthode de fabrication est très bien adaptée à la réalisation de matrices des nano-anneaux métalliques sur un substrat diélectrique. En effet, l'usinage *FIB* requière le dégagement des régions internes et externes aux couronnes métalliques, ce qui est une procédure laborieuse. Par conséquent, la technique proposée ici, peut s'avérer être intéressante pour la fabrication future de métamatériaux, dans le domaine encore peu exploité de l'optique visible.

Chapitre 5

Conclusion et perspectives

Ce travail de thèse présente un premier développement de la transposition, dans le domaine de l'optique visible, du principe de l'antenne segmentée magnétique appelée *nano-anneau*.

Beaucoup de travaux théoriques et quelques solutions expérimentales entrepris pour la recherche du meilleur nano-collecteur/nano-émetteur ont mis en évidence le fait que la sonde locale employée en microscopie champ proche, présente un comportement vectoriel. En effet, ce sont les composantes vectorielles du champ électromagnétique d'émission ou de collection de l'antenne qui déterminent ses capacités d'acquisition et de sélection de l'information. Ces performances dépendent directement de la nature de la sonde, des matériaux et de sa forme géométrique, ainsi que de l'état de polarisation du rayonnement d'éclairage. C'est la raison pour laquelle nous proposons la transposition du concept d'antenne à la sonde locale destinée à la microscopie champ proche optique.

Dans la littérature, nous trouvons déjà plusieurs travaux théoriques et expérimentaux, dans lesquels le concept d'antenne est utilisé pour la réalisation des sondes destinées à la microscopie champ proche, dans divers domaines spectraux, et plus récemment dans le domaine optique. Dans notre cas nous avons étudié, suivant une approche théorique et expérimentale, menées parallèlement, l'exemple d'un anneau métallique nanométrique qui représente le cas du dipôle élémentaire magnétique.

L'étude théorique et analytique, nous a permis de définir les propriétés vectorielles d'émission et de collection (suivant le principe de réciprocité), d'un anneau métallique de 500 nm de R_{ext} et 200 nm de R_{int} , en fonction de la polarisation et de la longueur d'onde du faisceau d'éclairage. Dans l'étude analytique, nous avons trouvé des résultats très intéressants lorsque la structure est associée à des polarisations axiales, radiale et azimutale, adaptées à la géométrie de l'anneau. L'interaction de la nano-antenne avec un faisceau en incidence normale polarisé radialement ou azimutalement, a mis en évidence l'effet d'une exaltation du champ longitudinal électrique ou magnétique, respectivement. Finalement,

l'analyse des résultats permet d'imaginer une nouvelle classe de nanosources capables d'émettre un champ confiné longitudinal, électrique ou magnétique, ou de nanocapteurs permettant l'acquisition, soit du champ électrique, soit du champ magnétique.

De plus, après avoir analysé les points critiques des différents paramètres nécessaires pour la bonne conduite d'un calcul numérique à partir d'un logiciel de calcul basé sur les différences finies spatio-temporelles (*FDTD*), nous avons réussi à mettre en place les conditions nécessaires de la simulation d'une structure métallique annulaire, et à confronter les résultats obtenus avec une approche analytique par analyse modale d'un cylindre métallique infini. Ce cas particulier donne pour la suite, des outils théoriques qui permettent d'entreprendre une étude de cette nano-antenne avec des dimensions plus petites, combinant ces deux approches numériques. L'emploi d'une analyse par *FDTD* 3D permet de s'affranchir de la symétrie axiale et ainsi d'étudier la possibilité de nano-structuration de l'antenne afin d'améliorer ses propriétés de collection ou d'émission.

Au niveau de l'approche expérimentale réalisée, nous avons proposé la fabrication d'anneaux de dimensions nanométriques pour une caractérisation optique *a posteriori*. Dans les premières tentatives de fabrication, des anneaux de diamètre externe de $2\ \mu m$ ont été obtenus. Ceux-ci ont été caractérisés optiquement en champ proche en configuration *STOM*, avec une illumination en polarisation circulaire. Cette caractérisation optique en champ proche a donné une première indication des propriétés spectrales d'émission d'un anneau métallique en polarisation circulaire et linéaire. Les résultats ont montrés qu'une augmentation de la longueur d'onde s'accompagne d'un passage d'un confinement du champ au centre de l'anneau, à une exaltation sur les bords de l'anneau. Mais à cause des grandes dimensions de l'anneau, une analyse numérique par *FDTD* avec nos moyens de calcul s'est finalement révélée impossible ; c'est pour cette raison que les résultats ne sont pas présentés dans ce mémoire.

Par la suite, l'obtention d'anneaux plus petits, nous a amené à préciser les étapes et les conditions requises lors du procédé classique de fabrication par lithographie électronique. Ceci a conduit à la réalisation d'anneaux de diamètre externe inférieur à $1\ \mu m$.

Malgré ces progrès technologiques, les limitations des performances du microscope électronique nous a conduit à proposer un procédé original qui combine la lithographie électronique et l'attaque ionique. Cette solution mixte permet de surmonter le problème de résolution imposé dans le procédé classique par lithographie électronique, et a conduit à la fabrication d'anneaux de dimension de $300\ nm$ de R_{ext} et d'environ $50\ nm$ d'épaisseur. Comme le procédé d'insolation par lithographie électronique donne la liberté de la disposition des motifs, la fabrication de nano-structures complexes peut être également réalisée suivant cette technique, pour l'exploitation d'un effet collectif de ces nano-antennes annulaires.

Comme nous l'avons précédemment dit, ce travail est le début d'un large et intéressant sujet de recherche dans le but de fonctionnaliser une sonde locale en microscopie champ proche. Les perspectives sont :

- d’une part, de prolonger cette étude pour des structures annulaires, collectives ou isolées, de dimensions plus petites, actuellement réalisables au sein de la centrale technologique *MIMENTO* de l’Institut *FEMTO-ST*, par le procédé mixte de fabrication proposé dans ce travail,
- d’autre part, de réaliser des antennes annulaires par l’usinage *FIB* à la centrale de technologie, rendant possible la fabrication d’une nano-antenne annulaire rapportée à l’extrémité d’une pointe diélectrique. L’usinage par *FIB* permet d’envisager également la fabrication de nano-anneaux segmentés analysés *a priori* par un approche théorique suivi en complément, d’une caractérisation expérimentale.

Finalement ces travaux doivent conduire à l’utilisation en routine de ces sondes facilement adaptables sur les dispositifs existants, qui conjuguées avec les possibilités d’adapter les caractéristiques du faisceau lumineux d’éclairage (polarisation et longueur d’onde), doivent aboutir rapidement à l’acquisition sélective des différentes composantes du champ électromagnétique.

Bibliographie

- [1] D. Courjon. *Near-Field Microscopy and Near-Field Optics*. Imperial College Press, London, 2003.
 - [2] D. Courjon and C. Bainier. *Le Champ Proche Optique : Théorie et Applications*. Springer-Verlag France et France Télécom R et D, Paris, 2001.
 - [3] *Proceedings of the 6th International Conference on Near Field Optics and Related Techniques*, volume 202. J. Microscopy, 2001.
 - [4] *Proceedings of the 7th International Conference on Near Field Optics and Related Techniques*, volume 209. J. Microscopy, 2003.
 - [5] F. de Fornel. *Les Ondes Évanescentes*. Eyrolles, Paris, 1997.
 - [6] M. Born and E. Wolf. *Principles of Optics : Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light*. Cambridge Univ. Press, 1997.
 - [7] D. Courjon, K. Sarayedine, and M. Spajer. Scanning tunneling optical microscopy. *Opt. Commun.*, 71(1-2) :23–8, May 1989.
 - [8] B. Hecht, H. Bielefeldt, Y. Inouye, D. W. Pohl, and L. Novotny. Facts and artifacts in near-field optical microscopy. *J. Appl. Phys.*, 81(6) :2492–8, March 1997.
 - [9] R. Bachelot, P. Gleyzes, and A.C. Boccara. Influence of both repulsive and attractive force fields in tapping mode atomic force microscopy. *Probe Microscopy*, 1 :89–97, 1997.
 - [10] E. H. Synge. Method for extending microscopic resolution into the ultra-microscopic region. *Philos. Mag.*, 6 :356–62, Aug. 1928.
 - [11] A. Naber, D. Molenda, U. C. Fischer, H.J. Maas, C. Höppener, N. Lu, and H. Fuchs. Enhanced light confinement in a near-field optical probe with a triangular aperture. *Phys. Rev. Lett.*, 89(21) :210801–1–4, Nov. 2002.
 - [12] A. Naber, H.J. Maas, K. Razavi, and U.C. Fischer. Dynamic force distance control suited to various probes for scanning near-field optical microscopy. *Rev. Sci. Instrum.*, 70(10) :3955–61, Oct. 1999.
 - [13] G. Hoffmann, J. Aizpurua, P. Apell, and R. Berndt. Influence of tip geometry in light emission from the scanning tunnelling microscope. *Surf. Sci.*, 482-485(Part 2) :1159–62, June 2001.
 - [14] L. Novotny, B. Hecht, and D. W. Pohl. Implications of high resolution to near-field optical microscopy. *Ultramicroscopy*, 71(1-4) :341–4, March 1998.
-

-
- [15] Xiumei Liu and Jia Wang. Research on the near-field distribution of nanometric apertures : Fiber optic probes and the influence of parameters of metal-coated probes. *Proceedings SPIE*, 4098 :128–37, 2000.
- [16] P. Hoffmann, B. Dutoit, and R.P. Salathe. Comparison of mechanically drawn and protection layer chemically etched optical fiber tips. *Ultramicroscopy*, 61(1-4) :165–70, Dec. 1995.
- [17] H. Muramatsu, K. Homma, N. Chiba, N. Yamamoto, and A. Egawa. Dynamic etching method for fabricating a variety of tip shapes in the optical fibre probe of a scanning near-field optical microscope. *J. Microscopy*, 194(2-3) :383–7, May-June 1999.
- [18] A. Lazarev, N. Fang, Qi-Luo, and Xiang-Zhang. Formation of fine near-field scanning optical microscopy tips. part II. by laser-heated pulling and bending. *Rev. Sci. Instrum.*, 74(8) :3684–8, Aug. 2003.
- [19] R. Stockle, C. Fokas, V. Deckert, R. Zenobi, B. Sick, B. Hecht, and U.P. Wild. High-quality near-field optical probes by tube etching. *Appl. Phys. Lett.*, 75(2) :160–2, July 1999.
- [20] P. Lambelet, A. Sayah, M. Pfeffer, C. Philipona, and F. Marquis-Weible. Chemically etched fiber tips for near-field optical microscopy : A process for smoother tips. *Appl. Opt.*, 37(31) :7289–92, Nov. 1998.
- [21] A. Klini, T. David, E. Bourillot, S. Emonin, P. Papadopoulos, J. P. Goudonnet, and G. Kotrotsios. Reproducible optical fiber tips for photon scanning tunneling microscopy with very small (<5 degrees) cone angle. *J. Lightwave Technol.*, 16(7) :1220–7, July 1998.
- [22] B.A.F. Puygranier and P. Dawson. Chemical etching of optical fibre tips. experiment and model. *Ultramicroscopy*, 85(4) :235–48, Dec. 2000.
- [23] S. Mononobe and M. Ohtsu. Fabrication of a pencil-shaped fiber probe for near-field optics by selective chemical etching. *J. Lightwave Technol.*, 14(10) :2231–5, Oct. 1996.
- [24] T. Yatsui, M. Kourogi, and M. Ohtsu. Increasing throughput of a near-field optical fiber probe over 1000 times by the use of a triple-tapered structure. *Appl. Phys. Lett.*, 73(15) :2090–2, Oct. 1998.
- [25] S. Mononobe, T. Saiki, T. Suzuki, and S. Koshihara M. Ohtsu. Fabrication of a triple tapered probe for near-field optical spectroscopy in UV region based on selective etching of a multistep index fiber. *Opt. Commun.*, 146(1-6) :45–8., Jan. 1998.
- [26] H. Nakamura, T. Saiki, H. Kambe, and K. Sawada. FDTD simulation of tapered structure of near-field fiber probe. *Comput. Phys. Commun.*, 142(1-3) :464–7, Dec. 2001.
- [27] N. Landraud. *Nanostructuration Optique de Films Sol-Gel Photochromatiques Par Microscopie En Champ Proche*. PhD thesis, Ecole Polytechnique, Paris, 2003.
- [28] R. Gallacchi, S. Kölsch, H. Knepe, and A.J. Meixner. Well-shaped fibre tips by pulling with a foil heater. *J. Microscopy*, 202(pt 1) :182–7, April 2001.
-

-
- [29] G.A. Valaskovic, M. Holton, and H. Morrison. Parameter control, characterization, and optimization in the fabrication of optical fiber near-field probes. *Appl. Opt.*, 34(7) :1215–28, March 1995.
- [30] T. Held, S. Emonin, O. Marti, and O. Hollricher. Method to produce high-resolution scanning near-field optical microscope probes by beveling optical fibers. *Rev. Sci. Instrum.*, 71(8) :3118–22, Aug. 2000.
- [31] C. Ecoffet, R. Bachelot, D. Deloeil, P. Royer, and D.J. Lougnot. Integration of polymer elements at the end of optical fibers by free-radical photopolymerization. *Synthetic Met.*, 124(11) :29–31, Oct. 2001.
- [32] M. Hocine, R. Bachelot, C. Ecoffet, N. Fressengeas, P. Royer, and G Kugel. End-of-fiber polymer tip : Manufacturing and modeling. *Synthetic Met.*, 127(1-3) :313–8, March 2002.
- [33] E. Oesterschulze, W. Scholz, C. Mihalcea, D. Albert, B. Sobisch, and W. Kulisch. Fabrication of small diamond tips for scanning probe microscopy application. *Appl. Phys. Lett.*, 70(4) :435–7, Jan. 1997.
- [34] T. Hantschel, T. Trenkler, W. Vandervorst, A. Malave, D. Buchel, W. Kulisch, and E. Oesterschulze. Tip-on-tip : A novel AFM tip configuration for the electrical characterization of semiconductor devices. *Microelectron. Eng.*, 46(1-4) :113–6, May 1999.
- [35] K. Unno, T. Shibata, and E. Makino. Micromachining of diamond probes for atomic force microscopy applications. *Sensor Actuat. A-Phys.*, 88(3) :247–55, 2001.
- [36] D. Alvarez, M. Fouchier, J. Kretz, J. Hartwich, S. Schoemann, and W. Vandervorst. Fabrication and characterization of full diamond tips for scanning spreading-resistance microscopy. *Microelectron. Eng.*, 73-74 :910–5, June 2004.
- [37] Phan Ngoc Minh, T. Ono, and M. Esashi. Microfabrication of miniature aperture at the apex of SiO₂/tip on silicon cantilever for near-field scanning optical microscopy. *Sensor Actuator*, 80(2) :163–9, March 2000.
- [38] C. Mihalcea, W. Scholz, S. Werner, S. Munster, E. Oesterschulze, and R. Kassing. Multipurpose sensor tips for scanning near-field microscopy. *Appl. Phys. Lett.*, 68(25) :3531–3, June 1996.
- [39] G. Genolet, M. Despont, P. Vettiger, U. Staufer, W. Noell, N.F. de Rooij, T. Cueni, M.P. Bernal, and F. Marquis-Weible. Micromachined photoplastic probe for scanning near-field optical microscopy. *Rev. Sci. Instrum.*, 72(10) :3877–9, Oct. 2001.
- [40] B.J. Kim, J.W. Flamma, E.S. Ten Have, M.F. Garcia-Parajo, N.F. Van-Hulst, and J. Brugger. Moulded photoplastic probes for near-field optical applications. *J. Microscopy*, 202(pt1) :16–21, April 2001.
- [41] D. Drews, W. Ehrfeld, M. Lacher, K. Mayr W. Noell, S. Schmitt, and M. Abraham. Nanostructured probes for scanning near-field optical microscopy. *Nanotechnology*, 10(1) :61–4, March 1999.
- [42] G. Schurmann, W. Noell, U. Staufer, N.F. de Rooij, R. Eckert, J.M. Freyland, and H. Heinzelmann. Fabrication and characterization of a silicon cantilever probe with an integrated quartz-glass (fused-silica) tip for scanning near-field optical microscopy. *Appl. Opt.*, 40(28) :5040–5, Oct. 2001.
-

-
- [43] M. Stopka, D. Drews, K. Mayr, M. Lacher, W. Ehrfeld, T. Kalkbrenner, M. Graf, V. Sandoghdar, and J. Mlynek. Multifunctional AFM/SNOM cantilever probes : Fabrication and measurements. *Microelectron. Eng.*, 53(1-4) :183–6, June 2000.
 - [44] P.A. Rasmussen, J. Thaysen, S. Bouwstra, and A. Boisen. Modular design of AFM probe with sputtered silicon tip. *Sensor Actuat. A-Phys.*, A92(1-3) :96–101, Aug. 2001.
 - [45] A. Chand, M. B. Viani, T. E. Schäffer, and P. K. Hansma. Microfabricated small metal cantilevers with silicon tip for atomic force microscopy. *J. Microelectromech. S.*, 9 :112–6, 2000.
 - [46] G. Schurmann, W. Noell, U. Staufer, and N.F. de Rooij. Microfabrication of a combined AFM–SNOM sensor. *Ultramicroscopy*, 82 :33–8, 2000.
 - [47] T. Gotszalk, P. Grabiec, F. Shi, P. Dumania, P. Hudek, and I. W. Rangelow. Fabrication of multipurpose AFM/SCM/SEP microprobe with integrated piezoresistive deflection sensor and isolated conductive tip. *Microelectron. Eng.*, 41-42 :477–80, March 1998.
 - [48] L. Shi, O. Kwon, A.C. Miner, and A. Majumdar. Design and batch fabrication of probes for sub–100 nm scanning thermal microscopy. *J. Microelectromech. S.*, 10(3) :370–8, Sept. 2001.
 - [49] L. Novotny, D. W. Pohl, and B. Hecht. Light confinement in scanning near–field optical microscopy. *Ultramicroscopy*, 61(1-4) :1–9, Dec. 1995.
 - [50] T. Thio, K.M. Pellerin, R.A. Linke, H. J. Lezec, and T.W. Ebbesen. Enhanced light transmission through a single subwavelength aperture. *Opt. Lett.*, 26(24) :1972–4, Dec. 2001.
 - [51] T. Thio, H. J. Lezec, T. W. Ebbesen, K. M. Pellerin, G. D. Lewen, A. Nahata, and R. A. Linke. Giant optical transmission of sub–wavelength apertures : Physics and applications. *Nanotechnology*, 13(3) :429–32, June 2002.
 - [52] J.A. Matteo, D.P. Fromm, Y. Yuen, P.J. Schuck, W.E. Moerner, and L. Hesselink. Spectral analysis of strongly enhanced visible light transmission through single C–shaped nanoapertures. *Appl. Phys. Lett.*, 85(4) :648–50, July 2004.
 - [53] A. Bouhelier, J. Renger, M.R. Beversluis, and L. Novotny. Plasmon–coupled tip–enhanced near–field optical microscopy. *J. Microscopy*, 210(pt. 3) :220–4, June 2003.
 - [54] M. Ashino and M. Ohtsu. Fabrication and evaluation of a localized plasmon resonance probe for near–field optical microscopy/spectroscopy. *Appl. Phys. Lett.*, 72(11) :1299–301, March 1998.
 - [55] L. Folks, M.E. Best, P.M. Rice, B.D. Terris, D. Weller, and J.N. Chapman. Perforated tips for high–resolution in–plane magnetic force microscopy. *Appl. Phys. Lett.*, 76(7) :909–11, Feb. 2000.
 - [56] T. Matsumoto and M. Ohtsu. Fabrication of a fiber probe with a nanometric protrusion for near–field optical microscopy by a novel technique of three–dimensional nanophotolithography. *J. Lightwave Technol.*, 14(10) :2224–30, Oct. 1996.
 - [57] D. Mulin, D. Courjon, J.P. Malugani, and B. Gauthier-Manuel. Use of solid electrolytic erosion for generating nano–aperture near–field collectors. *Appl. Phys. Lett.*, 71(4) :437–9, July 1997.
-

-
- [58] J.M. Freyland, R. Eckert, and H. Heinzelmann. High resolution and high sensitivity near-field optical microscope. *Microelectron. Eng.*, 53(1-4) :653–6, June 2000.
- [59] J.A. Veerman, A.M. Otter, L. Kuipers, and N. F. Van-Hulst. High definition aperture probes for near-field optical microscopy fabricated by focused ion beam milling. *Appl. Phys. Lett.*, 72(24) :3115–7, June 1998.
- [60] S. Pilevar, K. Edinger, W. Atia, I. Smolyaninov, and C. Davis. Focused ion-beam fabrication of fiber probes with well-defined apertures for use in near-field scanning optical microscopy. *Appl. Phys. Lett.*, 72(24) :3133–5, June 1998.
- [61] H. Heinzelmann, J.M. Freyland, R. Eckert, G. Schürmann, W. Noell, U. Staufer, and N.F. de Rooij. Towards better scanning near-field optical microscopy probes—progress and new developments. *J. Microscopy*, 194(pt. 2-3) :365–8, May-June 1999.
- [62] U. Schröter and A. Dereux. Surface plasmon polaritons on metal cylinders with dielectric core. *Phys. Rev. B*, 64(12) :125420/1–10., Sept. 2001.
- [63] E. Devaux, A. Dereux, E. Bourillot, J.C. Weeber, Y. Lacroute, J.P. Goudonnet, and C. Girard. Detection of the optical magnetic field by circular symmetry plasmons. *Appl. Surf. Sci.*, 164 :124–30, Sept. 2000.
- [64] E. Devaux, A. Dereux, E. Bourillot, J.C. Weeber, Y. Lacroute, J.P. Goudonnet, and C. Girard. Local detection of the optical magnetic field in the near zone of dielectric samples. *Phys. Rev. B*, 62(15) :10504–14, Oct. 2000.
- [65] Y. C. Martin, H. F. Hamann, and H. K. Wickramasinghe. Strength of the electric field in apertureless near-field optical microscopy. *J. Appl. Phys.*, 89(10) :5774–8, May 2001.
- [66] O. Sqalli, I. Utke, P. Hoffmann, and F. Marquis-Weible. Gold elliptical nanoantennas as probes for near field optical microscopy. *J. Appl. Phys.*, 92(2) :1078–83, July 2002.
- [67] G.T. Shubeita, S.K. Sekatskii, G. Dietler, and V.S. Letokhov. Local fluorescent probes for the fluorescence resonance energy transfer scanning near-field optical microscopy. *Appl. Phys. Lett.*, 80(15) :2625–7, April 2002.
- [68] T. Grosjean and D. Courjon. Polarization filtering induced by imaging systems : effect on image structure. *Phys. Rev. E*, 67(4) :46611–1–6, April 2003.
- [69] P. Combes. *Micro-Ondes Circuits Passifs, Propagation, Antennes*. Dunod, 1995.
- [70] F. Gardiol. *Traité D’électricité : Électromagnétisme*, volume III. Presses polytechniques et universitaires romandes, Lusanne, 1 edition, 2002.
- [71] J.P. Perez, R. Carles, and R. Fleckinger. *Electromagnétisme, Fondements et Applications*. Dunod, 4 edition, 2002.
- [72] S. J. Orfanidis. *Electromagnetic Waves and Antennas*. ECE Department Rutgers University, 94 Brett Road Piscataway, NJ 08854-8058, 2002.
- [73] H. Whiteside and R. King. The loop antenna as a probe. *IEEE T. Antenn. Propag.*, AP-12(3) :291–7, May 1964.
- [74] M. Kanda. Standard probes for electromagnetic-field measurements. *IEEE T. Antenn. Propag.*, 41(10) :1349–64, Oct. 1993.
-

-
- [75] V.G. Veselago. The electrodynamics of substances with simultaneously negative values of epsilon and mu. *Sov. Phys. Usp.*, 10(4) :509–14, Jan. 1968.
- [76] T. Weiland, R. Schuhmann, R.B. Gregor, C.G. Parazzoli, A.M. Vetter, D.R. Smith, D.C. Vier, and S. Schultz. Ab initio numerical simulation of left-handed metamaterials : Comparison of calculations and experiments. *J. Appl. Phys.*, 90(10) :5419–24, Nov. 2001.
- [77] R.A. Shelby, D.R. Smith, S.C. Nemat-Nasser, and S. Schultz. Microwave transmission through a two-dimensional, isotropic, left-handed metamaterial. *Appl. Phys. Lett.*, 78(4) :489–91, Jan. 2001.
- [78] D. R. Smith, W. J. Padilla, D. C. Vier, S. C. Nemat-Nasser, and S. Schultz. Composite medium with simultaneously negative permeability and permittivity. *Phys. Rev. Lett.*, 84(18) :4184–7, May 2000.
- [79] J. B. Pendry, A. J. Holden, D. J. Robbins, and W. J. Stewart. Magnetism from conductors and enhanced nonlinear phenomena. *IEEE T. Microw. Theory*, 47(11) :2075–84, Nov. 1999.
- [80] B. T. Rosner and D. W. Van der Weide. High-frequency near-field microscopy. *Rev. Sci. Instrum.*, 73(7) :2505–25, July 2002.
- [81] L. Nativel. *Imagerie Électromagnétique Hyperfréquence En Champ Proche : Du Concept de Sonde Locale Aux Applications Industrielles*. PhD thesis, Université de Montpellier II, Montpellier, 2002.
- [82] Yingjie-Gao and I. Wolff. A new miniature magnetic field probe for measuring three-dimensional fields in planar high-frequency circuits. *IEEE T. Microw. Theory*, 44(6) :911–8, June 1996.
- [83] Yingjie Gao and I. Wolff. Miniature electric near-field probes for measuring 3-D fields in planar microwave circuits. *IEEE T. Microw. Theory*, 46 :907–13, 1998.
- [84] S. S. Osofsky and S.E. Schwarz. Design and performance of a noncontacting probe for measurements on high-frequency planar circuits. *IEEE T. Microw. Theory*, 40(8) :1701–8, Aug. 1992.
- [85] M. Kanda. An electromagnetic near-field sensor for simultaneous electric and magnetic-field measurements. *IEEE T. Electromagn. C.*, EMC-26(3) :102–10, Aug. 1984.
- [86] E. Suzuki, S. Arakawa, H. Ota K.I. Arai, and R. Sato. Optical magnetic field probe with a loop antenna element doubly loaded with electrooptic crystals. *IEEE T. Electromagn. C.*, 46(4) :641–7, Nov. 2004.
- [87] I. Codreanu, F. J. Gonzalez, and G. D. Boreman. Detection mechanisms in microstrip dipole antenna-coupled infrared detectors. *Infrared. Phys. Techn.*, 44(3) :155–63, June 2003.
- [88] E. N. Grossman. Lithographic antennas for submillimeter and infrared frequencies. *IEEE International Symposium on Electromagnetic Compability*, pages 102–7, 1995.
- [89] J.C. Ginefri, L. Darrasse, and P. Crozat. Comparison of radio-frequency and microwave superconducting properties of YBaCuO dedicated to magnetic resonance imaging. *IEEE T. Appl. Supercon.*, 9(4) :4695–701, Dec. 1999.
-

-
- [90] F. J. González, B. Ilic, J. Alda, and G. D. Boreman. Antenna-coupled infrared detectors for imaging applications. *IEEE J. Sel. Top. Quant.*, 11(1) :117–20, Jan.-Feb. 2005.
 - [91] F. Keilmann. FIR microscopy. *Infrared. Phys. Technol.*, 36(1) :217–24, Jan. 1995.
 - [92] O. Mitrofanov, I. Brener, R. Harel, J. D. Wynn, L. N. Pfeiffer, K. W. West, and J. Federici. Terahertz near-field microscopy based on a collection mode detector. *Appl. Phys. Lett.*, 77(22) :3496–8, Nov. 2000.
 - [93] O. Mitrofanov, I. Brener, M. C. Wanke, R. R. Ruel, J. D. Wynn, A. J. Bruca, and J. Federici. Near-field microscope probe for far infrared time domain measurements. *Appl. Phys. Lett.*, 77(4) :591–3, July 2000.
 - [94] B. Rosner, J. Peck, and D. van-der Weide. Near-field antennas integrated with scanning probes for THz to visible microscopy : Scale modeling and limitations on performance. *IEEE T. Antenn. Propag.*, 50(5) :670–5, May 2002.
 - [95] F. Baida, D. Van-Labeke, and J. Vigoureux. Theoretical study of near-field surface plasmon excitation, propagation and diffraction. *Opt. Commun.*, 171(4-6) :317–31, Dec. 1999.
 - [96] B. Lamprecht. Ultrafast plasmon dynamics in metal nanoparticles, 2000. Dissertation at the Karl-Franzens-University of Graz.
 - [97] J.P. Kottmann, O.J.F. Martin, D.R. Smith, and S. Schultz. Spectral response of plasmon resonant nanoparticles with a non-regular shape. *Opt. Express*, 6(11) :213–9, May 2000.
 - [98] J.J. Mock, M. Barbic, D.R. Smith, D.A. Schultz, and S. Schultz. Shape effects in plasmon resonance of individual colloidal silver nanoparticles. *J. Chem. Phys.*, 116(15) :6755–9, April 2002.
 - [99] J.P. Kottmann, O.J.F. Martin, D.R. Smith, and S. Schultz. Plasmon resonances of silver nanowires with a nonregular cross section. *Phys. Rev. B*, 64(23) :235402/1–10, Dec. 2001.
 - [100] J.P. Kottmann, O.J.F. Martin, D.R. Smith, and S. Schultz. Field polarization and polarization charge distributions in plasmon resonant nanoparticles. *New J. Phys.*, 2 :27.1–27.9, June 2000.
 - [101] K. Tanaka and M. Tanaka. Simulation of an aperture in the thick metallic screen that gives high intensity and small spot size using surface plasmon polariton. *J. Microscopy*, 210(pt. 3) :294–300, June 2003.
 - [102] O. Sqalli, M.P. Bernal, P. Hoffmann, and F. Marquis-Weible. Improved tip performance for scanning near-field optical microscopy by the attachment of a single gold nanoparticle. *Appl. Phys. Lett.*, 76(15) :2134–6, April 2000.
 - [103] J.C. Weeber, J.R. Krenn, A. Dereux, B. Lamprecht, Y. Lacroute, and J.P. Goudonnet. Near-field observation of surface plasmon polariton propagation on thin metal stripes. *Phys. Rev. B*, 64(4) :045411/1–9., July 2001.
 - [104] J.C. Weeber, A. Dereux, C. Girard, J. R. Krenn, and J.P. Goudonnet. Plasmon polaritons of metallic nanowires for controlling submicron propagation of light. *Phys. Rev. B*, 60(12) :9061–8, Sept. 1999.
-

-
- [105] M. Salerno, J.R. Krenn, A. Hohenau, H. Ditlbacher, G. Schider, A. Leitner, and F.R. Aussenegg. The optical near-field of gold nanoparticle chains. *Opt. Commun.*, 248(4-6) :543–9, April. 2005.
- [106] J. R. Krenn, A. Dereux, J. C. Weeber, E. Bourillot, Y. Lacroute, J. P. Goudonnet, G. Schider, W. Gotschy, A. Leitner, F. R. Aussenegg, and C. Girard. Squeezing the optical near-field zone by plasmon coupling of metallic nanoparticles. *Phys. Rev. Lett.*, 82(12) :2590–3, March 1999.
- [107] H. Ditlbacher, J. R. Krenn, G. Schider, A. Leitner, and F. R. Aussenegg. Two-dimensional optics with surface plasmon polaritons. *Appl. Phys. Lett.*, 81(10) :1762–4, Sept. 2002.
- [108] A.L. Stepanov, J.R. Krenn, H. Ditlbacher, A. Hohenau, A. Drezet, B. Steinberger, A. Leitner, and F.R. Aussenegg. Quantitative analysis of surface plasmon interaction with silver nanoparticles. *Opt. Lett.*, 30(12) :1524–6, June 2005.
- [109] J.C. Weeber, Y. Lacroute, A. Dereux, E. Devaux, T. Ebbesen, C. Girard, M.U. Gonzalez, and A.L. Baudrion. Near-field characterization of bragg mirrors engraved in surface plasmon waveguides. *Phys. Rev. B*, 70(23) :235406–1–12, Dec. 2004.
- [110] A. Drezet, A.L. Stepanov, H. Ditlbacher, A. Hohenau, B. Steinberger, F.R. Aussenegg, A. Leitner, and J.R. Krenn. Surface plasmon propagation in an elliptical corral. *Appl. Phys. Lett.*, 86(7) :074104–1–3, Feb. 2005.
- [111] K. Sendur and W. Challener. Near-field radiation of bow-tie antennas and apertures at optical frequencies. *J. Microscopy*, 210(pt. 3) :279–83, June 2003.
- [112] E. Oesterschulze, G. Georgiev, M. Müller-Weigand, A. Vollkopf, and O. Rudow. Transmission line probe based on a bow-tie antenna. *J. Microscopy*, 202(pt. 1) :39–44, April 2001.
- [113] D.P. Fromm, A. Sundaramurthy, P. J. Schuck, G. Kino, and W. E. Moerner. Gap-dependent optical coupling of single "bowtie" nanoantennas resonant in the visible. *Nano. Lett.*, 4(5) :957–61, March 2004.
- [114] P. J. Schuck, D. P. Fromm, A. Sundaramurthy, G. S. Kino, and W. E. Moerner. Improving the mismatch between light and nanoscale objects with gold bowtie nanoantennas. *Phys. Rev. Lett.*, 94 :017402/1–4, 2005.
- [115] P. Mühlischlegel, H.J. Eisler, O.J.F. Martin, B. Hecht, and D.W. Pohl. Resonant optical antennas. *Science*, 308(5728) :1607–9, June 2005.
- [116] C. A. Pfeiffer, E. N. Economou, and K. L. Ngai. Surface polaritons in a circularly cylindrical interface : surface plasmons. *Phys. Rev. B*, 10(8) :3038–51, Oct. 1974.
- [117] L. Novotny and C. Hafner. Light propagation in a cylindrical waveguide with a complex, metallic, dielectric function. *Phys. Rev. E*, 50(5) :4094–106., Nov. 1994.
- [118] D. Van-Labeke and D. Barchiesi. Scanning-tunneling optical microscopy : A theoretical macroscopic approach. *J. Opt. Soc. Am. A*, 9(5) :732–9, May 1992.
- [119] D. Barchiesi, C. Girard, O. J. F. Martin, D. Van-Labeke, and D. Courjon. Computing the optical near-field distributions around complex subwavelength surface structures : A comparative study of different methods. *Phys. Rev. E*, 54(4 pt. B) :4285–92, Oct. 1996.
-

-
- [120] S. Goumri-Said, L. Salomon, J.P. Dufour, F. de Fornel, and A. V. Zayats. Numerical simulations of photon scanning tunneling microscopy : Role of a probe tip geometry in image formation. *Opt. Commun.*, 244(1-6) :245–58, Jan. 2005.
 - [121] R. Fikri, D. Barchiesi, F. H'Dhili, R. Bachelot, A. Vial, and P. Royer. Modeling recent experiments of apertureless near-field optical microscopy using 2D finite element method. *Opt. Commun.*, 221(1-3) :13–22, June 2003.
 - [122] A. Taflove and S. Hagness. *Computational Electrodynamics : The Finite-Difference Time-Domain Method*. Artech House, Boston, MA, 3 edition, 2005.
 - [123] K. S. Yee. Numerical solution of initial boundary value problems involving Maxwell's equations in isotropic media. *IEEE Trans. Ant. Prop.*, AP-14(3) :302–7, May 1966.
 - [124] E. Palik. *Handbook of optical constants of solids*. Academic press, 1985.
 - [125] T. Grosjean, A. Sabac, and D. Courjon. A versatile and stable device allowing the efficient generation of beams with radial, azimuthal or hybrid polarizations. *Opt. Commun.*, 252(1-3) :12–21, Aug. 2005.
 - [126] J. P. Berenger. A perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves. *J. Comput. Phys.*, 114(2) :185–200, Oct. 1994.
 - [127] J. Fang and Z. Wu. Generalized perfectly matched layer for the absorption of propagating and evanescent waves in lossless and lossy media. *IEEE T. Microw. Theory*, 44(12) :2216–22, Dec. 1996.
 - [128] A. Mary, A. Dereux, and T. L. Ferrell. Localized surface plasmons on a torus in the nonretarded approximation. *Phys. Rev. B*, 72(15) :155426–1–11, Oct. 2005.
 - [129] K. S. Youngworth and T. G. Brown. Focusing of high numerical aperture cylindricalvector beams. *Opt. Express*, 7(2) :77–87, July 2000.
 - [130] L. Novotny, M. R. Beversluis, K. S. Youngworth, and T. G. Brown. Longitudinal field modes probed by single molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 86(23) :5251–4, June 2001.
 - [131] J. Aizpurua, L. A. Blanco, P. Hanarp, D. S. Sutherland, M. Käll, G. W. Bryant, and F. J. Garcia de Abajo. Light scattering in gold nanorings. *J. Quant. Spectrosc. Ra.*, 89(1-4) :11–16, Nov.-Dec. 2004.
 - [132] J. Aizpurua, P. Hanarp, D. S. Sutherland, M. Käll, G. W. Bryant, and F. J. Garcia de Abajo. Optical properties of gold nanorings. *Phys. Rev. Lett.*, 90(5) :057401–1–4, Feb. 2003.
 - [133] P. Rai-Choudhury, editor. *Handbook of Microlithography, Micromachining, and Microfabrication*, volume 1 : Microlithography. Spie Optical Engineering Press, 1997.
 - [134] P. Rai-Choudhury, editor. *Handbook of Microlithography, Micromachining, and Microfabrication.*, volume 2 : Micromachining and Microfabrication. Spie Optical Engineering Press, 1997.
 - [135] P. Chu. *Microelectronic Materials and Processing*. Department of Physics and Materials Science, 2005.
 - [136] N. W. Cheung. *Microfabrication Technology*. Department of Electrical Engineering and Computer Sciences, 2005.
-

-
- [137] Y.J. Chan, C.K. Lin, H.C. Chiu, and S.C. Yang. *Nano Lithography and Etching Technologies*. Department of Electrical Engineering, 2003.
- [138] S. Matsui. Nanostructure fabrication using electron beam and its application to nanometer devices. *Proc. IEEE*, 85(4) :629–43, April 1997.
- [139] A. Tseng, K. Chen, C. D. Chen, and K. J. Ma. Electron beam lithography in nanoscale fabrication : Recent development. *IEEE T. Electron. Pa. M.*, 26(2) :141–9, April 2003.
- [140] W. Chen and H. Ahmed. Fabrication of 5–7 nm wide etched lines in silicon using 100 keV electron–beam lithography and polymethylmethacrylate resist. *Appl. Phys. Lett.*, 62(13) :1499–1501, March 1993.
- [141] H.G. Craighead, R.E. Howard, L.D. Jackel, and P.M. Mankiewich. 10–nm linewidth electron beam lithography on GaAs. *Appl. Phys. Lett.*, 42(1) :38–40, Jan. 1983.
- [142] U. Hübner, L. Fritzsche, D. Born, T. Wagner, H.-G. Meyer, and W. Krech. Advanced lift–off–technique for the fabrication of ultrasmall tunnel junctions. *8th International Superconductive Electronics Conference (ISEC '01) Extended abstracts*, pages 55–56, 2001.
- [143] I. Haller, M. Hatzakis, and R. Srinivasan. High-resolution positive resists for electron-beam exposure. *IBM J. Res. Dev.*, 12(3) :251–6, May 1968.
- [144] A. Olkhovets and H. G. Craighead. Low voltage electron beam lithography in PMMA. *J. Vac. Sci. Technol. B*, 17(4) :1366–70, July 1999.
- [145] D. F. Kyser and N. S. Viswanathan. Monte carlo simulation of spatially distributed beams in electron-beam lithography. *J. Vac. Sci. Technol.*, 12(6) :1305–8, Nov.–Dec. 1976.
- [146] G. Owen and P. Rissman. Proximity effect correction for electron beam lithography by equalization of background dose. *J. Appl. Phys.*, 54(6) :3573–81, June 1983.
- [147] N. Anupongpaibool and S. Y. Lee. Distributed correction of proximity effect in electron beam lithography on a heterogeneous cluster. *IEEE Comput.*, 7 :1–7, 2004.
- [148] S. Yasin, D.G. Hasko, and H. Ahmed. Comparison of MIBK– IPA and water – IPA as PMMA developers for electron beam nanolithography. *Microelectron. Eng.*, 61-62 :745–53, 2002.
- [149] K. Gamo. Nanofabrication by FIB. *Microelectron. Eng.*, 32(1-4) :159–71, Sept. 1996.
- [150] J. Gierak, D. Mailly, G. Faini, J. L. Pelouard, P. Denk, F. Pardo, J. Y. Marzin, A. Septier, G. Schmid, J. Ferré, R. Hydman, C. Chappert, J. Flicstein, B. Gayral, and J. M. Gérard. Nano–fabrication with focused ion beams. *Microelectron. Eng.*, 57-58 :865–75, Sept. 2001.
-